

**UNIVERSIDAD COMPLUTENSE DE MADRID**  
**FACULTAD DE CIENCIAS FÍSICAS**  
Departamento de Óptica y Estructura de la Materia



TESIS DOCTORAL

**Estudios fundamentales sobre el láser de iodo**

MEMORIA PARA OPTAR AL GRADO DE DOCTOR  
PRESENTADA POR

**Ángel Costela González**

DIRECTOR:

**Juan Manuel Figuera Acebal**

Madrid, 2015

Angel Costela González

TP

1981

028



\* 5 3 0 9 8 5 4 7 3 8 \*

UNIVERSIDAD COMPLUTENSE

53-031029-4

ESTUDIOS FUNDAMENTALES SOBRE EL LASER DE IODO

Departamento de Optica y Estructura de la Materia  
Facultad de Ciencias Físicas  
Universidad Complutense de Madrid  
1981



BIBLIOTECA

© Angel Costela González  
Edita e imprime la Editorial de la Universidad  
Complutense de Madrid. Servicio de Reprografía  
Noviciado, 3 Madrid-8  
Madrid, 1981  
Xerox 9200 XB 480  
Depósito Legal: M-29-1981

**Autor: ANGEL COSTELA GONZALEZ**

**ESTUDIOS FUNDAMENTALES SOBRE  
EL LASER DE IODO**

**Director: Juan Manuel de la Figuera Acebal**  
**Investigador Científico del C. S. I. C.**

**UNIVERSIDAD COMPLUTENSE DE MADRID**  
**Facultad de Ciencias Físicas**  
**Año 1980**





A Elena

Este trabajo ha sido realizado en el Departamento de Radisótopos del Instituto de Química Física "Rocasolano" bajo la dirección del Dr. Juan M. Figuera Acebal, a quien expreso muy especialmente mi agradecimiento.

Quiero expresar asimismo mi agradecimiento:

A los Drs. V. Menéndez, Roberto M. Utrilla y L. Valle por las valiosas discusiones y sugerencias que ayudaron a perfilar muchas de las ideas de este trabajo.

Al Prof. Dr. J.M. Gamboa, Jefe del Departamento de Radisótopos, por las facilidades proporcionadas para la realización de este trabajo.

Al personal de los Talleres de este Instituto por la colaboración prestada.

Al consejo Superior de Investigaciones Científicas por la ayuda económica proporcionada a través de una Beca durante los años 1977 a 1980.

I N D I C E

	<u>Pág.</u>
<u>INTRODUCCION GENERAL.....</u>	1
<u>I. FISICA DE LA OPERACION LASER .....</u>	3
1.1. INTERACCION DE LA RADIACION CON SISTEMAS ATOMICOS..	3
1.1.1. <u>Emisión y absorción. Inversión de población.</u>	3
1.1.2. <u>Emisión estimulada y dipolos oscilantes.....</u>	
1.1.3. <u>Tratamiento de Einstein de las transiciones</u> <u>inducidas y espontáneas .....</u>	9
1.1.4. <u>El coeficiente de ganancia .....</u>	
1.1.5. <u>Saturación de ganancia en medios con ensan-</u> <u>chamiento homogéneo e inhomogéneo.....</u>	20
1.1.6. <u>Condición para oscilación láser .....</u>	25
1.1.7. <u>Las ecuaciones de velocidad .....</u>	
1.1.8. <u>Propiedades de la radiación láser .....</u>	30
1.1.8.1. <u>Coherencia.....</u>	30
1.1.8.2. <u>Anchura espectral de la radiación</u> <u>láser .....</u>	33
1.1.9. <u>Método para obtener inversión de población</u> <u>(bombeo o excitación) .....</u>	34
1.1.9.1. <u>Absorción de radiación .....</u>	35
1.1.9.2. <u>Colisiones .....</u>	36
1.1.9.3. <u>Transformación de energía .....</u>	36

	<u>Pág..</u>
1.2. RESONADORES OPTICOS .....	37
1.2.1. <u>Modos en resonadores láser</u> .....	38
1.2.2. <u>Configuraciones de los resonadores láser</u> .....	50
1.2.2.1. Resonador plano-paralelo .....	51
1.2.2.2. Espejos de grandes radios de curvatura.....	52
1.2.2.3. Resonador confocal .....	53
1.2.2.4. El resonador concéntrico .....	56
1.2.2.5. El resonador hemisférico .....	56
1.2.3. <u>Sensibilidad al alineamiento de las diversas configuraciones</u> .....	59
1.2.4. <u>Ventanas al ángulo de Brewster. Extracción de energía del sistema</u> .....	60
II. <u>LASER DE FOTODISOCIACION DE IODO</u> .....	64
2.1. LASERES QUIMICOS .....	64
2.2. EL LASER DE IODO .....	69
2.2.1. <u>Sustancias de trabajo para el láser de iodo</u> ..	72
2.2.2. <u>Espectroscopía de la transición láser</u> .....	73
2.2.2.1. Estructura hiperfina de la transición	73
2.2.2.2. Probabilidades de transición, anchuras de línea y sección eficaz de las transiciones .....	75

	<u>Pág.</u>
2.2.2.3. Láser de iodo en un campo magnético .....	77
2.2.2.4. La velocidad de relajación entre subniveles de la estructura hiperfina .....	79
2.2.3. <u>Procesos cinéticos en el láser de iodo.</u>	80
2.2.4. <u>La fuente de bombeo</u> .....	87
2.2.5. <u>Características del láser de iodo</u> .....	89
2.2.5.1. Pulso de salida en el láser de iodo. Dependencia con la presión .....	89
2.2.5.2. Inhomogeneidad e índice de refracción .....	91
2.2.5.3. Generación de pulsos cortos de alta energía .....	92
2.2.6. <u>Ventajas y desventajas del láser de fotodisociación de iodo. Problemas pendientes</u> .....	95
III. <u>MONTAJE DEL DISPOSITIVO EXPERIMENTAL Y PUESTA A PUNTO DEL SISTEMA LASER</u> .....	99
3.1. CAVIDAD OPTICA .....	99
3.2. SISTEMA DE BOMBEO.....	101
3.3. SISTEMA DE DETECCION DEL DESTELLO Y DEL PULSO LASER .....	106

	<u>Pág.</u>
3.4. SISTEMA DE ALTO VACIO .....	111
3.5. CARACTERISTICAS DEL CIRCUITO DE DESCARGA Y DE LA LAMPARA DE DESTELLO .....	113
3.5.1. <u>Descargas de alta intensidad en gases</u> .....	113
3.5.2. <u>La lámpara como un elemento del circuito</u> ..	115
3.5.3. <u>La lámpara como fuente de radiación de cuer-</u> <u>po negro. Características espectrales y emi-</u> <u>sión ultravioleta</u> .....	125
3.5.4. <u>Características del circuito de descarga em-</u> <u>pleado</u> .....	129
3.5.5. <u>Características espectrales y emisión ultra-</u> <u>violeta de las lámparas empleadas</u> .....	140
3.6. FUNCIONAMIENTO DEL SISTEMA LASER .....	145
3.6.1. <u>Alineamiento de la cavidad</u> .....	145
3.6.2. <u>Purificación, preparación e introducción del</u> <u>reactivo en el tubo de reacción</u> .....	148
3.6.3. <u>Puesta en funcionamiento del sistema. Detec-</u> <u>ción y análisis de la emisión láser</u> .....	151
IV. <u>ESTUDIO DE LA EMISION LASER UTILIZANDO CH<sub>3</sub>I COMO MEDIO</u> <u>ACTIVO</u> .....	153
4.1. INFLUENCIA DE LA VELOCIDAD DE BOMBEO .....	153
4.1.1. <u>Dispositivo experimental</u> .....	153

	<u>Pág.</u>
4.1.2. <u>Resultados obtenidos y análisis de los mis-</u> <u>mos</u> .....	155
4.1.3. <u>Circuito en régimen crítico</u> .....	162
4.2. ADICION DE GASES INERTES Y VARIACION DE LA ENER- GIA DE DESCARGA .....	164
4.2.1. <u>Dispositivo experimental</u> .....	165
4.2.2. <u>Resultados obtenidos</u> .....	166
4.2.2.1. Comienzo de la emisión láser ....	178
4.2.2.2. Duración de la emisión láser ....	180
4.2.2.3. Primer y último pico de la señal láser .....	183
4.2.2.4. Operación láser repetitiva .....	183
4.3. INFLUENCIA DE LA LONGITUD DE ONDA DE LA RADIACION DE BOMBEO .....	190
4.3.1. <u>Experimentos con lámpara de destello en pa-</u> <u>ralelo y filtro de vidrio</u> .....	191
4.3.2. <u>Experimentos con lámpara de destello concén-</u> <u>trica al tubo láser y solución filtrante...</u>	192
4.3.2.1. Dispositivo experimental .....	192
4.3.2.2. Resultados obtenidos .....	194
4.3.2.2.1 <u>Características de la emisión lá-</u> <u>ser</u> .....	195



	<u>Pág.</u>
4.3.2.2.2. <u>Operación láser repetitiva</u> ..	200
4.4. TRANSMITIVIDAD Y PERDIDAS EN LA CAVIDAD OPTICA.	
GANANCIA .....	201
4.4.1. <u>Técnicas experimentales</u> .....	203
4.4.1.1. Determinación de la transmitivi dad .....	205
4.4.1.2. Determinación de la ganancia ..	212
4.4.2. <u>Resultados</u> .....	213
4.4.2.1. Medidas de transmitividad y pér didat en la cavidad óptica.....	213
4.4.2.2. Medidas de la ganancia .....	215
V. <u>OPERACION LASER UTILIZANDO CH<sub>3</sub>I COMO MEDIO ACTIVO:</u>	
<u>DISCUSION</u> .....	216
5.1. INTERPRETACION CUALITATIVA DE LOS RESULTADOS ...	216
5.1.1. <u>Efecto de la longitud de onda de irradia- ción sobre la fotólisis</u> .....	216
5.1.1.1. Dependencia de la fotólisis con la longitud de onda de irradia- ción. ....	216
5.1.1.2. Propiedades de transferencia de energía del Ar, CO <sub>2</sub> y SF <sub>6</sub> .....	222
5.1.1.3. Efecto termalizador del SF <sub>6</sub> ....	224
5.1.2. <u>Efecto de la longitud de onda de irradia- ción sobre la emisión láser</u> .....	226

	<u>Pág.</u>
5.1.3. <u>Operación repetitiva láser y ganancia ..</u>	228
5.1.4. <u>Efecto sobre la operación láser de la</u> <u>adición de gases inertes y de la varia-</u> <u>ción de la energía de descarga.....</u>	231
5.1.4.1. <u>Excitación vibracional frente a</u> <u>excitación traslacional .....</u>	231
5.1.4.2. <u>Comienzo de la emisión láser ..</u>	236
5.1.4.2.1. <u>El coeficiente de ganancia y</u> <u>las pérdidas en la cavidad ..</u>	237
5.1.4.2.2. <u>Efecto moderador del gas dilu-</u> <u>yente .....</u>	238
5.1.4.2.3. <u>Efecto del gas diluyente sobre</u> <u>la velocidad con que varía la</u> <u>inversión de población .....</u>	240
5.1.4.3. <u>Duración de la emisión láser ...</u>	245
5.1.4.3.1. <u>Efecto de los gases diluyentes</u>	246
5.1.4.3.2. <u>Efecto de la energía de descar-</u> <u>ga .....</u>	250
5.1.4.4. <u>Ganancia .....</u>	253
5.1.4.4.1. <u>Efecto de la adición de gases</u> <u>inertes .....</u>	253
5.1.4.4.2. <u>Efecto de la energía de descar-</u> <u>ga .....</u>	254

	<u>Pág.</u>
5.1.5. <u>Velocidad de bombeo y operación láser...</u>	256
5.1.6. <u>Desactivación por iodo molecular .....</u>	259
5.2. INTERPRETACION CUANTITATIVA DE LOS RESULTADOS. MO DELO CINETICO PARA EL LASER DE FOTODISOCIACION DE IODO CON CH <sub>3</sub> I COMO MEDIO ACTIVO .....	263
5.2.1. <u>El modelo .....</u>	265
5.2.1.1. Descripción del mecanismo cinéti- co implicado en nuestro modelo...	265
5.2.1.1.1. <u>Fotólisis a longitudes de onda mayor que 220 nm .....</u>	267
5.2.1.1.2. <u>Fotólisis con todo el arco de Xenon (<math>\lambda &gt; 165</math> nm) .....</u>	272
5.2.1.2. Ecuación de velocidad de la densi- dad de fotones .....	273
5.2.1.3. Simulación del bombeo .....	278
5.2.1.4. Integración numérica .....	279
5.2.2. <u>Resultados y discusión .....</u>	281
5.2.2.1. Productos de descomposición .....	281
5.2.2.2. Cálculo de la inversión de pobla- ción .....	285
5.2.2.3. Cálculo de la sección eficaz de emisión estimulada y de la ganan- cia .....	289

	<u>Pág.</u>
5.2.2.4. Cálculo de las características de la emisión láser.....	295
VI. <u>CONCLUSIONES</u> .....	297
VII. <u>APENDICE I</u> .....	301
VIII. <u>BIBLIOGRAFIA</u> .....	325



## INTRODUCCION GENERAL

El estudio del láser de fotodisociación de iodo, reseñado en primer lugar por Kasper y Pimentel [1], [2], ha recibido una gran atención en los últimos años en conexión con la investigación relacionada con el control de la fusión nuclear. El laser de iodo se ha convertido en uno de los principales candidatos para conseguir fusión laser debido a su capacidad para generar pulsos de salida de elevada potencia y sus parámetros, ya logrados o potencialmente posibles, son comparables con los de los láseres de alta potencia de Neodimio y  $\text{CO}_2$ . El estudio de los aspectos básicos de este láser tiene, pues, un enorme interés, puesto que un conocimiento detallado y en profundidad de los hechos más relevantes relacionados con el mismo puede tener una repercusión inmediata e importante en el contexto de la crisis energética y de la acuciante necesidad del desarrollo de nuevas fuentes de energía alternativas a las ya existentes.

El estudio que presentamos a continuación se ha organizado de acuerdo con el siguiente esquema. En el capítulo 1 se ha efectuado un resumen de los hechos más importantes concernientes a la Física del laser. En la primera sección del mismo se trata de la interacción de la radiación con sistemas atómicos, con especial hincapié en el concepto de ganancia. En la segunda sección de dicho capítulo se estudian los resonadores ópticos y se analizan las condiciones de estabilidad de cada uno de ellos.

En el capítulo 2 presentamos los hechos más relevantes relacionados con el láser de fotodisociación de iodo así como los problemas pendientes al respecto.

En el capítulo 3 se describe el dispositivo experimental general empleado y se analizan detalladamente las características del circuito de descarga y de las lámparas de destello.

En el capítulo 4 se presentan los resultados correspondientes al estudio de la emisión láser utilizando  $\text{CH}_3\text{I}$  como medio activo. Se estudia la influencia sobre la emisión láser de la velocidad de bombeo, de la adición de diversos gases inertes al medio activo, de la variación de la energía de descarga y de la longitud de onda de la radiación de bombeo. Se describe el método utilizado para la medida de la ganancia y se presentan los resultados obtenidos.

La discusión detallada de los resultados presentados en el capítulo 4 se aborda en el capítulo 5. Se utilizan dichos resultados para la construcción de un modelo cinético que predice satisfactoriamente los principales hechos de la operación láser y permite el cálculo de secciones eficaces de emisión estimulada.

Se presentan, por último, las conclusiones generales que se desprenden del estudio realizado.

## I. FISICA DE LA OPERACION LASER

### 1.1. INTERACCION DE LA RADIACION CON SISTEMAS ATOMICOS

#### 1.1.1. Emisión y absorción. Inversión de población

En el año 1817 Fraunhofer había observado líneas oscuras en el espectro del Sol. Estas líneas oscuras fueron explicadas en 1861 por Bunsen y Kirchhoff, los cuales propusieron que la luz procedente de la parte interna, caliente, del Sol consistía en ondas que poseían un rango continuo de frecuencias y que al pasar a través de la atmósfera exterior, más fría, experimentaban una absorción selectiva. Las líneas oscuras, sobrepuestas al espectro continuo, eran, por tanto, características de la atmósfera externa del Sol. Algunas de estas líneas no pudieron ser identificadas cuando se comparó el espectro solar con espectros de gases conocidos y fueron, por tanto, atribuidas a un nuevo gas denominado Helio por Sir Norman Lockyer en 1868. Posteriormente, en 1894, Sir William Ramsey descubrió Helio en la Tierra.

El descubrimiento del Helio es un ejemplo de procesos de emisión y absorción y marca un periodo durante el cual se reunieron una gran cantidad de datos acerca de líneas espectrales, si bien no existía una explicación acerca de como se generaban las diferentes series espectrales y sus longitudes de onda. En 1911 Rutherford mostró que los átomos podrían ser descritos en términos de un núcleo central cargado positivamente rodeado por una nube de electrones cargados negativamente que describían órbitas alrededor del núcleo. Pero de acuerdo con las leyes de la teoría clásica un sistema consistente en electrones girando en torno al núcleo atómico debería radiar energía hasta que los electrones cayeran sobre el núcleo.



En 1913 Niels Bohr sugirió la existencia en el átomo de un conjunto discreto de orbitas estacionarias a cada una de las cuáles le correspondía un valor definido de la energía. La energía del átomo puede tomar entonces solo valores discretos, de acuerdo con la órbita ocupada por el electrón. Una transición de un estado estacionario a otro es acompañada por la emisión o absorción de energía radiante. Cuando el átomo reduce su energía por moverse el electrón a otra órbita permitida diferente se emite un fotón, cuya energía  $\Delta E$  es igual a la diferencia entre las energías del átomo antes y después de la transición. El fotón se puede describir en términos de una onda cuya frecuencia  $\nu$  es dada por la relación de Einstein  $E = h\nu$ , donde  $h$  es la constante de Planck. Por tanto, una colección de un gran número de átomos podría emitir solamente un espectro de líneas discretas cuyas frecuencias serían el resultado de todas las posibles combinaciones de estados de energía iniciales y finales correspondientes a un solo átomo. Bohr fue capaz de explicar de esta manera y de un modo cuantitativo el espectro de emisión del hidrógeno y de átomos simples similares. Átomos más complicados envuelven cálculos más dificultosos, pero, en general, el esquema simple de Bohr todavía es útil y se mantienen los mismos principios: cada átomo se puede describir en términos de un conjunto de posibles niveles de energía correspondiendo cada nivel a una particular configuración electrónica.

Consideremos, por simplicidad, un átomo con solamente dos niveles de energía, un estado superior  $E_2$  y un estado inferior  $E_1$  (Fig. 1). Si el átomo está en el estado superior y hace una transición

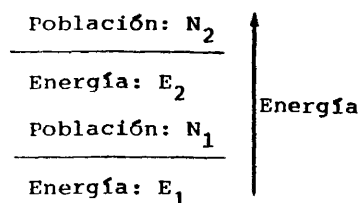


Fig. 1

sición al estado inferior la energía debe ser emitida en forma de radiación de frecuencia:

$$\nu = \frac{E_2 - E_1}{h} \quad (1.1)$$

Por otro lado, si el átomo se encuentra inicialmente en el estado de energía inferior  $E_1$ , para hacer una transición al estado más alto  $E_2$  debe absorber energía y, por tanto, radiación de frecuencia dada por la ecuación (1.1).

La naturaleza fundamental del proceso de emisión fue descrita por Albert Einstein en 1917. Einstein mostró que la emisión podía ocurrir en dos vías:

(i) Pasando el átomo al estado energético inferior según un proceso recido por el azar. Esta es la llamada emisión espontánea.

(ii) Un fotón con energía igual a la diferencia de energías entre los dos estados energéticos considerados interactúa con el átomo situado en el estado superior y provoca el cambio hacia el estado inferior con la creación de un segundo fotón. Este proceso es el conocido como emisión estimulada y puede considerarse como el reverso de la absorción puesto que en ambos casos es necesaria la presencia de radiación de frecuencia adecuada.

La emisión estimulada conlleva dos hechos de gran importancia de los que las propiedades de la emisión láser es tributaria. En primer lugar, el fotón producido por la emisión estimulada posee una energía casi igual a la del fotón causante de la emisión y, por tanto, las ondas luminosas asociadas con ellos deben tener frecuencias muy próximas.

En segundo lugar, las ondas de luz asociadas con los dos fotones es tán en fase. La luz es coherente. En el caso de la emisión spontánea el proceso de creación de los fotones está regido por el azar y como consecuencia las ondas de luz asociadas con ellos tienen sus fases al azar. La luz es incoherente.

Consideremos dos sistemas de energía de dos niveles represen tando un átomo en un estado superior y un átomo en un estado inferior, respectivamente, y supongamos que un fotón de energía igual a la dife rencia de energía entre los dos niveles se aproxima a los dos átomos. Nos podemos preguntar que suceso será más probable, la absorción o la emisión estimulada. Einstein mostró que, bajo circunstancias normales, ambos procesos son igualmente probables. Es entonces evidente que en un sistema que contenga un gran número de átomos (o moléculas) el proceso dependerá del número relativo de átomos en los estados superior e infe rior. Una mayor población de átomos en el nivel superior motivará que el proceso dominante sea la emisión estimulada, mientras que si la ma yor población ocurre en el nivel inferior el proceso dominante será la absorción.

Bajo condiciones de equilibrio térmico la población de los niveles de energía obedece la bien conocida distribución de Boltzmann:

$$\frac{n_2}{n_1} = \exp \left[ - (E_2 - E_1)/kT \right] \quad (1.2)$$

donde  $E_1$  y  $E_2$  son las energías de los niveles,  $n_1$  y  $n_2$  su población,  $k$  la constante de Boltzmann y  $T$  la temperatura absoluta.

Si la diferencia de energía entre los dos niveles fuese de

$kT$ , que a temperatura ambiente es  $\sim 0,025$  eV, la población del nivel superior sería  $1/e$  de la del inferior, o sea,  $n_2 \sim 0,37 n_1$ . Para que una transición al nivel fundamental origine un fotón de radiación visible, la diferencia de energías entre el estado excitado y el fundamental debe ser de  $\sim 1,25$  eV. En consecuencia, en condiciones normales de equilibrio a temperatura ambiente la población de tal estado excitado será prácticamente despreciable. De aquí se sigue que la probabilidad de que los fotones de radiación visible sean absorbidos en nuestro sistema es mucho mayor que la de que originen emisión estimulada. Para que domine la emisión estimulada es necesario incrementar la población en el estado de energía superior hasta que sea mayor que la del estado energético inferior, situación que es conocida como inversión de población. Conviene notar que la ecuación (1.2) muestra que aunque la temperatura  $T$  sea infinitamente alta, las poblaciones serán solamente iguales y simplemente la absorción igualará la emisión estimulada. Para que la emisión estimulada exceda a la absorción la temperatura  $T$  en la ecuación (1.2) debería ser negativa, razón por la que un estado de inversión de población es algunas veces llamado estado de temperatura negativa. Se puede obtener inversión de población a temperaturas ordinarias, pero solamente bajo condiciones de no equilibrio en que la ley de Boltzmann no se aplica. Un láser es un dispositivo óptico o electrónico que opera basado en la emisión inducida o estimulada de radiación.

#### 1.1.2. Emisión estimulada y dipolos oscilantes

Los procesos de emisión y absorción descritos en el apartado anterior se pueden analizar en términos de la interacción de los electrones con un campo electromagnético oscilante. Como una consecuencia

de esta interacción se modifica la energía interna del sistema atómico o molecular y se emite o se absorbe energía. El campo electromagnético incidente sobre un sistema atómico particular puede interactuar con un electrón en una determinada relación de fase y tomar energía de él, incrementando por tanto la energía del campo a expensas del sistema; alternatively, cuando el campo eléctrico interactúa con el electrón en una relación de fase diferente pero especificada, puede ceder energía al sistema del electrón. Por tanto, la emisión de radiación desde un sistema electrónico o la absorción de radiación por el mismo se puede discutir en términos de interacción electrónica con el campo electromagnético bajo condiciones de fase especificadas.

Un tratamiento clásico considerando al electrón ligado como un oscilador armónico es útil en cuanto que proporciona una comprensión intuitiva de los procesos de absorción y emisión inducida. Este electrón ligado elásticamente se puede considerar como una pequeña antena interactuando con una onda electromagnética incidente. La onda electromagnética proporciona una fuerza conductora para el oscilador electrónico, y se muestra que el electrón oscilante puede absorber energía de la onda incidente o ceder energía a la misma, dependiendo de las fases relativas. Un análisis detallado de esta aproximación al problema puede encontrarse en el capítulo III de la referencia [3] .

La descripción clásica sitúa la escena para la acción láser y suministra tres importantes elementos que se deben satisfacer para

obtener emision estimulada de radiación:

- 1.- El oscilador debe mantener una relación fija de fase con el campo electromagnético incidente.
- 2.- El oscilador debe disponer de una fuente externa de suministro de energía (en terminología láser este suministro externo de energía proviene del bombeo del sistema, que proporciona suficiente energía al oscilador como para que continúe radiando a la onda electromagnética).
- 3.- La energía radiada es coherente con la onda incidente y, por tanto, otros osciladores que sean estimulados a radiar lo harán también en fase con el oscilador inicial. Esto permite acción coherente entre un conjunto de osciladores. El efecto global es el de amplificar la onda electromagnética incidente.

Conviene notar que los dipolos clásicos originan emisión estimulada sólo cuando tienen la fase adecuada que es, en general, independiente de la radiación incidente. En un sistema atómico real la radiación es gobernada por la Mecánica Cuántica y en este caso, distintamente a como ocurre con el dipolo clásico, el campo incidente induce en el átomo excitado un dipolo con la fase adecuada para la emisión.

#### 1.1.3. Tratamiento de Einstein de las transiciones inducidas y espontáneas.

En la descripción clásica la radiación puede ser emitida únicamente por procesos estimulados que requieren la presencia de un campo eléctrico. En un sistema cuantizado un átomo puede también radiar por un

proceso espontáneo. Este proceso se caracteriza por la vida media del electrón en el estado excitado; esto es, si un electrón es excitado a un nivel de energía por encima del fundamental permanecerá en el estado excitado por algún tiempo, después del cuál retorna espontáneamente al nivel fundamental radiando energía. Este proceso ocurre sin la presencia de un campo electromagnético y es un fenómeno mecano-cuántico sin análogo clásico.

Consideremos ahora nuevamente un sistema electrónico de dos niveles de energía. Sea  $N_2$  la densidad de átomos en el nivel superior, de energía  $E_2$ , y sea  $N_1$  la densidad de átomos en el nivel inferior, de energía  $E_1$ . Habrá transiciones entre estos dos niveles de energía. Einstein desarrolló una demostración muy directa de la interacción entre la radiación y la materia en un sistema de estas características. Radiación de frecuencia adecuada ( $\nu = (E_2 - E_1)/h$ ) originará transiciones entre los dos niveles de energías  $E_2$  y  $E_1$ . Consideremos el sistema de átomos en equilibrio térmico a la temperatura  $T$ . Si llamamos  $g_1$  y  $g_2$  a los factores de degeneración, o sea, al número de estados disponibles para los electrones en los niveles de energía  $E_1$  y  $E_2$ , respectivamente, la ley de Boltzmann (1.2) se escribe:

$$\frac{N_2}{N_1} = \frac{g_2}{g_1} \exp \left( - \frac{E_2 - E_1}{kT} \right) = \frac{g_2}{g_1} \exp (-h\nu/kT) \quad (1.3)$$

Einstein procedió entonces a definir coeficientes de velocidad radiativa y los relacionó entre sí teniendo en cuenta que como el sistema se encuentra en equilibrio térmico las velocidades de emisión y absorción a la frecuencia  $\nu$  deben ser iguales. Para ello procedió como sigue.

Correspondiendo a las transiciones entre los estados del sistema atómico introdujo tres coeficientes de probabilidad  $A$ ,  $B_{21}$  y  $B_{12}$ , que se definen del modo siguiente:

1.- El coeficiente  $A$  es el coeficiente de emisión espontánea. Representa la probabilidad por segundo de que un átomo en el estado  $E_2$  efectúe una transición al estado  $E_1$  sin ninguna influencia externa. No se requiere, pues, la presencia de ningún campo electromagnético. De la definición de  $A$  se sigue inmediatamente:

$$A = 1/\tau_s \quad (1.4)$$

donde  $\tau_s$  es la vida media del átomo radiante.

2.- Los coeficientes  $B_{21}$  y  $B_{12}$  son los coeficientes de la emisión estimulada y de absorción, respectivamente. Se definen en términos de la energía electromagnética causante de las transiciones.

Supongamos que los átomos están en presencia de un campo de radiación tal que la densidad de energía del mismo en el rango de frecuencias  $dv$  es  $\rho(v)dv$ . Entonces, si el átomo se encuentra en el estado de energía  $E_1$  (estado inferior), la probabilidad por segundo de que haya una transición al estado de energía superior  $E_2$  absorbiendo un cuanto de radiación  $h\nu$  es:

$$B_{12} \rho(v)$$

Similamente, si el átomo se encuentra en el estado superior  $E_2$  en presencia de radiación, la probabilidad por segundo de que haya una transición al estado de energía inferior  $E_1$  con emisión de un cuanto de energía  $h\nu$  es:

$$[A + B_{21} \rho(v)]$$



Como en el equilibrio el número de átomos que realizan la transición de  $E_2$  a  $E_1$  debe ser igual que el número de átomos haciendo la transición de  $E_1$  a  $E_2$ , podemos escribir:

$$N_2 [A + B_{21} \rho(\nu)] = N_1 B_{12} \rho(\nu) \quad (1.5)$$

Usando la ecuación de Boltzmann (1.3) para la razón  $n_2/n_1$  podemos reescribir (1.5) en la forma:

$$\rho(\nu) = \frac{A/B_{21}}{(g_1/g_2) (B_{12}/B_{21}) \exp(h\nu/kT) - 1} \quad (1.6)$$

La ley de radiación del cuerpo negro descubierta por Planck proporciona una expresión alternativa para la densidad de energía por unidad de rango de frecuencia:

$$\rho(\nu) = \left( \frac{8\pi h \nu^3}{c^3} \right) \left[ \frac{1}{\exp(h\nu/kT) - 1} \right] \quad (1.7)$$

donde  $c$  es la velocidad de la luz.

Comparando (1.6) y (1.7) vemos que:

$$\frac{A}{B_{21}} = \frac{8\pi h \nu^3}{c^3} = \frac{8\pi h}{\lambda^3} \quad (1.8)$$

y

$$g_1 B_{12} = g_2 B_{21}$$

Para un sistema atómico sin degeneración, esto es con  $g_1 = g_2 = 1$ , vemos que  $B_{12} = B_{21} = B$ . Este coeficiente de emisión inducida  $B$  se puede relacionar con el momento dipolar de la transición  $\mu$  por medio de un tratamiento standard en el marco de la teoría cuántica de la radiación, obteniéndose la relación [4] :

$$B = \frac{2 \pi^2}{h^2 \epsilon_0} \mu^2 \quad (1.10)$$

donde  $\epsilon_0$  es la permitividad del espacio vacío.

Conviene notar que el parámetro útil para la acción láser es el coeficiente B. El coeficiente A representa un término de pérdidas e introduce en el sistema fotones fuera de fase con respecto al flujo incidente. Por tanto, la emisión espontánea es una fuente de ruido en un láser. Notemos también de (1.8) que para un B dado el coeficiente de emisión espontánea es mucho menor para microondas que para frecuencias ópticas a causa de la dependencia en  $1/\lambda^3$ . Por tanto, el ruido debido a la emisión espontánea en la región de las microondas es mucho menos significativo que a frecuencias ópticas.

Utilizando (1.8) y (1.4) podemos escribir para la probabilidad por segundo de emisión estimulada:

$$(W'_{21})_i = B_{21} \rho(\nu) = \frac{Ac^3}{8\pi h \nu^3} \rho(\nu) = \frac{c^3}{8\pi h \nu^3 \tau_s} \rho(\nu) \quad (1.11)$$

La ecuación (1.11) da la probabilidad por segundo de emisión estimulada debida a la presencia de un campo con un espectro uniforme con densidad de energía por unidad de frecuencia  $\rho(\nu)$ . Lo que a nosotros nos interesa es la probabilidad de transición inducida por un campo monocromático de frecuencia  $\nu$ . Sea  $(W_{21})_i$  la probabilidad de transición por segundo buscada. En primer lugar tenemos que tener en cuenta que hemos estado suponiendo implícitamente que la energía de la transición es exactamente  $E_2 - E_1$ . En general,  $E_2 - E_1$  no se conoce precisamente y la probabilidad de que  $E_2 - E_1$  caiga en un intervalo comprendido entre E y E

+ dE viene dada por  $g(E)dE = (1/h) g(\nu)dE$ , donde  $g(\nu)$  es la función normalizada de forma de la línea para la transición  $2 \rightarrow 1$ . Se puede por tanto, definir  $g(\nu)d\nu$  como la probabilidad de que una transición dada entre los niveles de energía 1 y 2 se traduzca en emisión o absorción de un fotón con energía comprendida entre  $h\nu$  y  $h(\nu + d\nu)$ . La curva  $g(\nu)$  se normaliza de modo que el área total bajo la misma sea siempre la unidad:

$$\int_{-\infty}^{\infty} g(\nu)d\nu = 1 \quad (1.12)$$

El efecto global causado por la imprecisión considerada es que un fotón de frecuencia  $\nu$  no estimulará con certeza absoluta la emisión de otro fotón con frecuencia  $\nu$ : lo único que se puede decir es que hay una probabilidad  $g(\nu)d\nu$  de que el fotón estimulado tenga una frecuencia comprendida entre  $\nu$  y  $\nu + d\nu$ . Argumentos similares se pueden aplicar a la emisión espontánea y es, por tanto, necesario reemplazar  $(W'_{21})_i$  y  $A$  en la ecuación (1.11) por  $(W'_{21})_i g(\nu)d\nu$  y  $Ag(\nu)d\nu$ , respectivamente, e integrar sobre todas las frecuencias.  $(W'_{21})_i g(\nu)d\nu$  proporciona ahora la probabilidad de que la transición inducida por la densidad de radiación  $\rho(\nu)$  involucre fotones de frecuencias comprendidas entre  $\nu$  y  $\nu + d\nu$ .  $Ag(\nu)d\nu$  es la probabilidad para emisión espontánea en el intervalo de frecuencias comprendido entre  $\nu$  y  $\nu + d\nu$ .

En segundo lugar debemos esperar que  $(W_{21})_i$  se convierta en  $(W'_{21})_i$  si la anchura espectral del campo de radiación se incrementa gradualmente desde cero hasta un punto en el que sea grande comparada con la anchura de la línea de la transición.

Los requisitos anteriores se satisfacen tomando  $(W_{21})_i$  como:

$$(W_{21})_i = \frac{c^3 \rho_v}{8\pi h \nu^3 \tau_s} g(\nu) \quad (1.13)$$

donde  $\rho_v$  es la densidad de energía (Julios/cm<sup>3</sup>) del campo electromagnético que induce la transición. Para mostrar que  $(W_{21})_i$  tal como es dado por (1.13) se convierte efectivamente en  $(W'_{21})_i$  cuando el espectro del campo se ensancha, podemos considerar el campo de espectro ensanchado como formado por un gran número de componentes monocromáticas de frecuencia  $\nu_K$  con fases al azar, y sumando todas las probabilidades de transición individuales obtenidas a partir de (1.13) obtener:

$$(W'_{21})_i = \sum_K (W_{21})_i(\nu_K) = \frac{c^3}{8\pi h \tau_s} \sum_K \frac{\rho_{\nu_K}}{\nu_K^3} g(\nu_K) \quad (1.14)$$

donde  $\rho_{\nu_K}$  es la densidad de energía de la componente del campo que oscila a la frecuencia  $\nu_K$ . Si las  $\nu_K$  están muy próximas se puede reemplazar la sumatoria por una integral sustituyendo  $\rho_{\nu_K}$  por  $\rho(\nu) d(\nu)$ , donde  $\rho(\nu)$  es la densidad de energía por unidad de frecuencia, con lo que (1.14) se convierte en:

$$(W'_{21})_i = \frac{c^3}{8\pi h \tau_s} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\rho(\nu) g(\nu)}{\nu^3} d\nu \quad (1.15)$$

que es, efectivamente, la expresión en que se convierte (1.11) cuando se tiene en cuenta la forma de la línea de la transición. En situaciones en las que  $\rho(\nu)$  sea suficientemente ancho comparado con  $g(\nu)$ , con lo que la variación de  $\rho(\nu)/\nu^3$  sobre la región de interés (donde  $g(\nu)$  es apreciable) se puede despreciar, podemos extraer  $\rho(\nu)/\nu^3$  de la integral y, usando (1.12), obtener nuevamente la expresión (1.11).

Volviendo a la expresión (1.13) y teniendo en cuenta que la

densidad de la radiación  $\rho_\nu$  se relaciona con intensidad de la misma  $I_\nu$  (vatios por metro cuadrado) por la relación:

$$I_\nu = c \rho_\nu \quad (1.16)$$

se tiene finalmente:

$$(w_{21})_i = \frac{Ac^2 I_\nu}{8\pi h \nu^3} g(\nu) = \frac{c^2 I_\nu}{8\pi h \nu^3 \tau_s} g(\nu) = \frac{\lambda^2 I_\nu}{8\pi h \nu \tau_s} g(\nu) \quad (1.17)$$

para la probabilidad por unidad de tiempo de emisión estimulada.

Procediendo del mismo modo para la absorción, se tiene:

$$(w_{12})_i = \left(\frac{g_2}{g_1}\right) \frac{\lambda^2 I_\nu}{8\pi h \nu \tau_s} g(\nu) = (w_{21})_i \left(\frac{g_2}{g_1}\right) \quad (1.18)$$

Un tratamiento más formal y riguroso del tema, que conduce a los mismos resultados básicos (1.17) y (1.18), requiere el uso de la teoría cuántica de la radiación. Un tal tratamiento se puede encontrar por ejemplo, en el capítulo 8 de la referencia [4] .

#### 1.1.4. El coeficiente de ganancia

Consideremos el paso de una onda monocromática de frecuencia  $\nu$  a través de un conjunto de átomos del tiempo mostrado en Fig. 2. Suponemos, pues, que únicamente intervienen en la interacción dos niveles, con energías  $E_1$  y  $E_2$ . Esta suposición está justificada cuando la frecuencia  $\nu$  del campo de radiación verifica la condición  $\nu \sim \frac{(E_2 - E_1)}{h}$ . Sea  $N_2$  (átomos/m<sup>3</sup>) la densidad de átomos en el nivel 2 y  $N_1$  (átomos/m<sup>3</sup>) la densidad de átomos en el nivel 1. El exceso de transiciones inducidas  $2 \rightarrow 1$  sobre las  $1 \rightarrow 2$  por unidad de volumen y unidad de tiempo

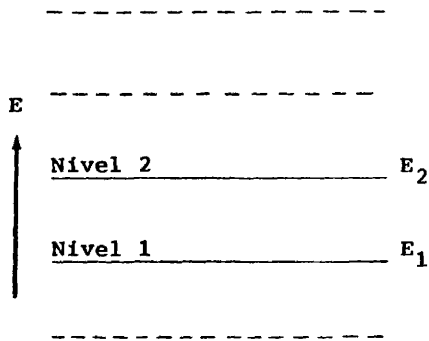


Figura 2

origina un incremento de la potencia inducida:

$$\frac{\text{Potencia}}{\text{Volumen}} = [N_2 (W_{21})_i - N_1 (W_{12})_i] h \nu \quad (1.19)$$

(hemos ignorado las transiciones espontáneas). Usando (1.17) y (1.18):

$$\frac{\text{Potencia}}{\text{Volumen}} = (N_2 - \frac{g_2}{g_1} N_1) \frac{\lambda^2 g(\nu) I_\nu}{8\pi\tau_s} \quad (1.20)$$

Suponiendo que esta potencia se añade a la onda inductora se tiene que ésta crece de acuerdo con (suponemos que la onda inductora viaja en la dirección z):

$$\frac{d I_\nu(z)}{dz} = \left( \frac{\text{Potencia}}{\text{Volumen}} \right) = \gamma(\nu) I_\nu(z) \quad (1.21)$$

donde, usando (1.20):

$$\gamma(\nu) = \frac{(N_2 - \frac{g_2}{g_1} N_1) \lambda^2}{8\pi\tau_s} g(\nu) \quad (1.22)$$

Ocurrirá ganancia o incremento de intensidad cuando exista inversión de población, o sea, cuando:

$$N_2 \geq N_1 \frac{g_2}{g_1}$$

Si esta condición no se verifica, simplemente el medio absorberá, que es lo que ocurre normalmente en cualquier material sin inversión de población. El coeficiente  $\gamma(\nu)$  suele llamarse coeficiente de ganancia.

Si  $N_1$  y  $N_2$  son independientes de  $z$  (o sea, si  $\gamma(\nu)$  es independiente de  $z$ ), situación que prevalece cuando el bombeo es uniforme y son despreciables los efectos de saturación (la inversión de población  $\Delta N = N_2 - N_1 \frac{g_2}{g_1}$  disminuye cuando se incrementa la intensidad del campo inductor, fenómeno que se conoce con el nombre de saturación), la integración de la expresión (1.21) conduce a un crecimiento exponencial de la intensidad:

$$I_\nu(z) = I_\nu(0) e^{\gamma(\nu)z} \quad (1.23)$$

Frecuentemente el coeficiente de ganancia  $\gamma(\nu)$  se expresa en función de la sección eficaz de emisión estimulada  $\sigma$ . La relación entre ambas magnitudes se obtiene de forma inmediata por medio del siguiente razonamiento. Cuando una onda monocromática de frecuencia  $\nu$ , que viaja en la dirección  $z$ , pasa a través de un medio en el que hay una densidad de inversión de población  $\Delta N = N_2 - N_1 \frac{g_2}{g_1}$ , el incremento en la intensidad de la misma al recorrer el camino comprendido entre el punto  $z$  y el punto  $z + dz$  será proporcional a su intensidad en el punto  $z$ , al valor de la inversión de población en el punto  $z$  y al intervalo  $dz$  recorrido:

$$d I_\nu = \sigma I_\nu(z) \Delta N dz$$

El coeficiente de proporcionalidad  $\sigma$ , que tiene las dimensiones de una superficie, es la llamada sección eficaz de emisión estimulada. Se tiene, pues:

$$\frac{dI_v}{dz} = \sigma \Delta N I_v(z) \quad (1.24)$$

Comparando (1.24) y (1.21) obtenemos la relación buscada entre  $\gamma(\nu)$  y

$$\sigma: \quad \gamma(\nu) = \sigma \Delta N = \sigma \left( N_2 - \frac{g_2}{g_1} N_1 \right) \quad (1.25)$$

Asimismo, comparando (1.25) y (1.22) se tiene:

$$\sigma = \frac{\lambda^2}{8\pi\tau_s} g(\nu) = \frac{c^2}{8\pi\nu^2\tau_s} g(\nu) \quad (1.26)$$

En función de  $\sigma$  la expresión (1.23) se escribe:

$$I_v(z) = I_v(0)e^{\sigma\Delta Nz} \quad (1.27)$$

que es la forma en que aparece más corrientemente.

Consideremos ahora un medio amplificador de longitud  $L$ . Sea la intensidad de la radiación incidente en el mismo  $I_v(0)$ . A la salida del medio la intensidad de la radiación será  $I_v(L)$ . Se llama ganancia  $G$  del medio amplificador a la relación:

$$G = \frac{I_v(L)}{I_v(0)} \quad (1.28)$$

Si la intensidad de la radiación incidente es pequeña (aproximación de pequeña señal), con lo que son despreciables los efectos de saturación, se puede aplicar la expresión (1.27) y se tiene:

$$G = e^{\sigma\Delta NL} \quad (1.29)$$



#### 1.1.5. Saturación de ganancia en medios con ensanchamiento homogéneo e inhomogéneo

Se utiliza el término ensanchamiento para indicar la anchura espectral finita de la respuesta de los sistemas atómicos a los campos electromagnéticos. El ensanchamiento se puede poner de manifiesto, por ejemplo, en una gráfica de la absorción como función de la frecuencia o en la dependencia con la frecuencia de la ganancia del medio láser. El ensanchamiento dependerá de los procesos físicos que lo originan. Estos procesos se pueden dividir en dos grupos para los cuáles el mecanismo de ensanchamiento de la línea se llamará homogéneo e inhomogéneo, respectivamente. Una línea de resonancia homogéneamente ensanchada es una dentro de la cual todos los átomos responden del mismo modo a radiación de entrada resonante monocromática. Por el contrario, dentro de una línea de resonancia inhomogéneamente ensanchada diferentes grupos de átomos tienen diferentes respuestas de frecuencia y, por tanto, solamente aquellos átomos pertenecientes a grupos con respuestas de frecuencia próximas a la frecuencia de la radiación de entrada interactuarán apreciablemente con ella. La figura 3 puede clarificar lo arriba dicho. En ella se muestra el comportamiento de saturación de una línea de resonancia ensanchada homogénea e inhomogéneamente bajo la influencia de radiación monocromática a la frecuencia indicada por la flecha. Para una línea inhomogénea es posible la formación de un "agujero" (hole burning) o sea, únicamente ocurre saturación para átomos con frecuencias de resonancia próximas a la de la radiación incidente.

El ensanchamiento homogéneo es debido a uno o a una combina

ción de los siguientes factores: (i) colisiones inelásticas con fonones o con otros átomos o moléculas (ensanchamiento con la presión); (ii) transiciones a otros niveles (que pueden ser transiciones radiativas espontáneas o transiciones no radiativas); (iii) colisiones elásticas que destruyen la coherencia de fase, y (iv) ensanchamiento debido a la interacción con un campo electromagnético. Los principales ejemplos de ensanchamiento inhomogéneo son: (i) el debido a las impurezas en un cristal (los niveles de energía y, por tanto, las frecuencias de transición, dependen del entorno inmediato de cada átomo; la tensión, siempre presente, así como otro tipo de imperfecciones del cristal, hace que los entornos varíen de un ión al próximo, causando un ensanchamiento en las frecuencias de la transición), y (ii) el debido al movimiento de los átomos o moléculas en gases a bajas presiones (por efecto Doppler cada átomo "ve" un campo de radiación de frecuencia diferen

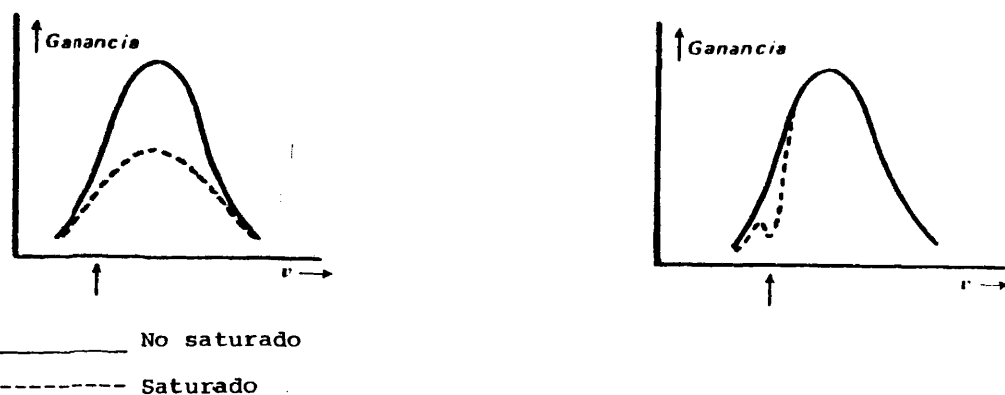


Figura 3.- Comportamiento de saturación de líneas de resonancia ensanchadas homogénea e inhomogéneamente bajo la influencia de intensa radiación monocromática a la frecuencia indicada por la flecha [5].

te, dependiendo de la velocidad de su movimiento).

Los ensanchamientos homogéneos e inhomogéneos se caracterizan por líneas  $g(\nu)$  de contornos diferentes. Una línea inhomogéneamente ensanchada tiene un contorno Gaussiano y una homogéneamente ensanchada un contorno Lorentziano.

Concretamente, se tiene [4] .

Ensanchamiento homogéneo:

$$g(\nu) = \frac{\Delta\nu/2 \pi}{(\nu - \nu_0)^2 + (\Delta\nu/2)^2} \quad (1.30)$$

$$g(\nu_0) = \frac{2}{\pi \Delta\nu} \quad (1.31)$$

$$\Delta\nu = \frac{1}{\pi T_2} \quad (1.32)$$

donde  $\nu_0$  es la frecuencia en el centro de la línea,  $\Delta\nu$  la anchura a media altura y  $T_2$  es una constante de tiempo que caracteriza la pérdida de coherencia atómica (usualmente  $T_2$  es el intervalo de tiempo entre colisiones).

Ensanchamiento inhomogéneo (Doppler):

$$g(\nu) = \frac{2(\ln 2)^{1/2}}{\pi^{1/2} \Delta\nu_D} e^{-[4(\ln 2)(\nu - \nu_0)^2 / \Delta\nu_D^2]} \quad (1.33)$$

$$g(\nu_0) = \frac{2(\ln 2)^{1/2}}{\pi^{1/2} \Delta\nu_D} \quad (1.34)$$

$$\Delta\nu_D = 2\nu_0 \sqrt{\frac{2kT}{Mc^2} \ln 2} \quad (1.35)$$

donde  $M$  es la masa del átomo y el subíndice  $D$  significa Doppler.  $T$  es la temperatura absoluta y  $k$  la constante de Boltzmann.

Ya hemos hablado de la diferencia más importante entre los sistemas atómicos con ensanchamiento homogéneo e inhomogéneo, la cuál se manifiesta en los efectos de saturación. Específicamente, cuando tales sistemas son usados como medios láser la ganancia disminuye al incrementar la intensidad del campo de radiación. El valor de esta disminución y su dependencia espectral son diferentes en los dos casos, tal como se ve claramente en la figura 3. Cuantitativamente se tiene [4],

#### Ensanchamiento homogéneo:

El coeficiente de ganancia es ahora:

$$\gamma(\nu) = \frac{\gamma_0(\nu)}{1 + \frac{I_\nu}{I_s(\nu)}} \quad (1.36)$$

donde  $\gamma_0(\nu)$  es la ganancia no saturada (campo de radiación nulo),

$$\gamma_0(\nu) = \frac{\Delta N_0 \lambda^2 g(\nu)}{8\pi \tau_s} \quad (1.37)$$

que es la misma expresión (1.22) pero con la inversión de población  $\Delta N_0$  correspondiente al caso en que el campo de radiación es nulo.  $I_\nu$  es la intensidad (vatios/m<sup>2</sup>) dada por:

$$I_\nu = \frac{c \epsilon_0 E_0^2}{2}$$

donde  $\epsilon_0$  es la permitividad del espacio vacío,  $c$  la velocidad de la luz y  $E_0$  la amplitud del campo de radiación. En cuanto a  $I_s(\nu)$  que es la intensidad a la cuál la ganancia a la frecuencia  $\nu$  se reduce en un fac

tor  $1/2$  (comparada con la ganancia no saturada), recibe el nombre de intensidad de saturación y viene dada por la expresión:

$$I_s(\nu) = \frac{4\pi h\nu}{\left(\frac{\tau}{\tau_s}\right) \lambda^2 g(\nu)} \quad (1.38)$$

donde  $\tau$  es la vida media de la inversión de población (que en la mayoría de los casos coincide con la vida media real-no necesariamente radiativa-del nivel superior). Como, de acuerdo con (1.38) la intensidad de saturación es inversamente proporcional a  $g(\nu)$ , la saturación se va haciendo más difícil conforme nos alejamos del centro de la línea.

#### Ensanchamiento inhomogéneo:

El coeficiente de ganancia es

$$\gamma(\nu) = \frac{\gamma_0(\nu)}{\sqrt{1 + \frac{I_\nu}{I_s}}} \quad (1.39)$$

donde la intensidad de saturación de la línea inhomogénea vale:

$$I_s = \frac{2\pi^2 h\nu \Delta\nu}{\left(\frac{\tau}{\tau_s}\right) \lambda^2} \quad (1.40)$$

En la expresión (1.40)  $\Delta\nu$  es la anchura homogénea de la línea inhomogénea, que se define de modo que los átomos con frecuencias de transición agrupadas dentro del intervalo  $\Delta\nu$  los unos son respecto a los otros se pueden considerar como indistinguibles, constituyendo un "paquete" homogéneo dentro de la línea inhomogénea.

Comparando (1.39) y (1.40) con (1.37) y (1.38) vemos que las

diferencias esenciales en el comportamiento de sustancias para sistemas con ensanchamientos homogéneos e inhomogéneos son:

(i) El sistema inhomogéneo se satura más "lentamente", tal como indica la presencia de la raíz cuadrada en (1.39).

(ii) La intensidad de saturación en el caso inhomogéneo no depende de la posición en la forma de la línea. Esto es,  $I_g$  en (1.40) no depende de  $g(v)$ , mientras que sí lo hace la intensidad de saturación en el caso homogéneo, expresión (1.38).

Un tratamiento muy completo del tema de la saturación y de los ensanchamientos homogéneos e inhomogéneos se puede encontrar en las referencias [3] y [4]. Un estudio detallado de la ganancia en un medio amplificador láser se presenta en la referencia [6].

#### 1.1.6. Condición para oscilación láser

Hemos visto que un medio con inversión de población es capaz de amplificar radiación a frecuencias próximas a las de la transición correspondiente. Situando tal medio amplificador en el interior de un resonador óptico obtenemos un oscilador láser. El medio láser almacena energía suministrada por el bombeo. Esta energía es liberada por emisión estimulada en forma de radiación óptica la cuál, reflejada por los espejos que cierran a ambos lados la cavidad, oscila a lo largo del eje de la misma una y otra vez, ganando energía a cada oscilación. La condición limitante de la operación láser como oscilador será, por tanto, que la ganancia sea lo bastante grande como para compensar las pérdidas tanto internas como externas, en el sistema.

Se había obtenido que la velocidad neta del cambio de energía por unidad de volumen debido a transiciones estimuladas (tanto emisión como absorción) venía dada por la expresión (1.20), que se escribe:

$$\frac{dI_v}{dz} = \frac{\text{Potencia}}{\text{Volumen}} = \left( N_2 - \frac{g_2}{g_1} N_1 \right) \frac{\lambda^2 g(v) I_v}{8 \pi \tau_s}$$

Por tanto, la velocidad de incremento en intensidad se escribirá:

$$\left( \frac{dI}{dt} \right)_{\text{ganancia}} = c \frac{dI_v}{dz} = \left( N_2 - \frac{g_2}{g_1} N_1 \right) \frac{c \lambda^2 g(v) I_v}{8 \pi \tau_s} = \left( N_2 - \frac{g_2}{g_1} N_1 \right) \frac{c^3 g(v)}{8 \pi \nu^2 \tau_s} I_v$$

(1.41)

La velocidad total de las pérdidas se define:

$$\left( \frac{dI_v}{dt} \right)_{\text{perdidas}} = \frac{I_v}{\tau_c} \quad (1.42)$$

donde  $\tau_c$  es la vida media de un fotón en la cavidad (un fotón en la cavidad tendrá una vida media promedio antes de que sea dispersado, emitido o perdido; esta constante de tiempo es lo que designa como  $\tau_c$ ).

Combinando las ecuaciones (1.41) y (1.42) obtenemos una condición que claramente debe ser satisfecha para que pueda tener lugar la acción láser:

$$\left( \frac{dI_v}{dt} \right)_{\text{ganancia}} - \left( \frac{dI_v}{dt} \right)_{\text{perdidas}} \geq 0 \quad (1.43)$$

De aquí obtenemos inmediatamente la condición para la densidad de inversión de población umbral en el centro de la línea, o sea, la mínima in

versión de población requerida para que tenga lugar la oscilación láser.

$$\Delta N_t \equiv (N_{2t} - N_{1t} \frac{g_2}{g_1}) = \frac{8\pi\nu^2 \tau_s}{c^3 \tau_c g(\nu_0)} \quad (1.44)$$

donde  $g(\nu_0)$  es el valor de  $g(\nu)$  en el centro de la línea de la transición y con el subíndice t representamos el umbral. Las ecuaciones (1.31) y (1.34) proporcionan el valor de  $g(\nu_0)$  para ensanchamientos homogéneos e inhomogéneos, respectivamente.

Usando (1.22) y (1.44) podemos escribir el coeficiente de ganancia umbral:

$$\gamma_t = \frac{\Delta N_t \lambda^2}{8\pi \tau_s} g(\nu_0) = \frac{1}{c \tau_c} \quad (1.45)$$

Un método alternativo, a partir de las pérdidas de la cavidad óptica, que también permite la determinación de la ganancia umbral se describe en la sección 4.4. A partir de la ganancia umbral así determinada y aplicando (1.29) (puesto que en el umbral se cumplen las condiciones que permiten aplicar dicha expresión) se halla el coeficiente de ganancia umbral. Usando entonces (1.45) se puede determinar finalmente el valor de  $\tau_c$ .

#### 1.1.7. Las ecuaciones de velocidad

La interacción de un sistema con inversión de población con un campo de radiación con la frecuencia correcta  $\nu$  se puede describir por medio de la llamada aproximación de las ecuaciones de velocidad. Estas ecuaciones de velocidad simplificadas para el láser se obtienen como sigue [4]. Consideremos el sistema atómico con niveles de energía



mostrados en la figura 4. La transición láser será la  $2 \rightarrow 1$ . El nivel 0 es el estado fundamental. Las vidas medias reales de los niveles 2 y 1 son  $t_2$  y  $t_1$ , respectivamente. La vida media  $t_2$  del nivel superior puede ser debida a transiciones espontáneas radiativas al nivel 1, cuya velocidad designaremos por  $t_s^{-1}$ , transiciones no radiativas al nivel 1 y transiciones, tanto radiativas como no radiativas, a otros niveles. Todos estos hechos se pueden tener en cuenta poniendo:

$$\frac{1}{t_2} = \frac{1}{t_{21}} + (\text{velocidades de transición a otros niveles}) \quad (1.46)$$

donde:

$$\frac{1}{t_{21}} = \frac{1}{t_s} + \left( \frac{1}{t_{21}} \right)_{\text{no radiativa}} \quad (1.47)$$

La densidad de átomos en los niveles 1 y 2 es  $N_1$  y  $N_2$ , respectivamente, y las degeneraciones de dichos niveles  $g_1$  y  $g_2$ . Las velocidades de bombeo a los niveles (átomos/segundo-volumen) son  $R_1$  y  $R_2$ . El bombeo a la velocidad  $R_1$  en el nivel láser inferior no es deseable puesto que origina una reducción de la ganancia óptica. No obstante, en muchas situaciones, especialmente en las que envuelven bombeo por medio de descarga de electrones o reacciones químicas, es inevitable algún grado de bombeo al nivel inferior, razón por la que es necesario incluir  $R_1$  en el análisis.

Las velocidades de las transiciones entre los niveles 1 y 2 son, de acuerdo con (1.17) y (1.18):

$$W_{2 \rightarrow 1} = W_1(\nu) = \frac{\lambda^2 g(\nu)}{8\pi h\nu t_s} I_\nu \quad (1.48a)$$

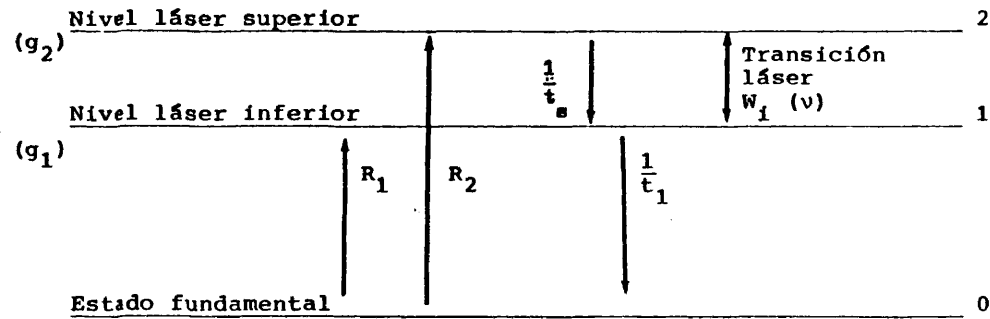


Figura 4.- Niveles de energía y velocidades de transición y relajación en un sistema láser.

$$W_{1 \rightarrow 2} = \frac{g_2}{g_1} W_l(v) \quad (1.48b)$$

Las ecuaciones que describen el cambio en las poblaciones de los niveles debido a los efectos combinados del bombeo, transiciones radiativas espontáneas e inducidas y procesos de relajación, son:

$$\frac{dN_2}{dt} = R_2 - \frac{N_2}{t_2} - (N_2 - \frac{g_2}{g_1} N_1) W_l(v) \quad (1.49)$$

$$\frac{dN_1}{dt} = R_1 - \frac{N_1}{t_1} + \frac{N_2}{t_{21}} + (N_2 - \frac{g_2}{g_1} N_1) W_l(v)$$

La ecuación que gobierna la densidad de energía de los fotones en la cavidad es:

$$\frac{d\rho}{dt} = h\nu (N_2 - N_1 \frac{g_2}{g_1}) W_l(v) - \frac{\rho}{\tau_c} + \frac{N_2}{\tau_s} \quad (1.50)$$

El término inicial de esta ecuación surge de los fotones que aparecen

en la cavidad por emisión estimulada; el segundo representa la velocidad de pérdidas de los fotones en la cavidad, siendo  $\tau_c$  la vida media de los fotones en la cavidad; el término final representa la fracción de la emisión espontánea de radiación que cae dentro del modo adecuado de la cavidad láser. La fracción  $1/f$  representa el inverso del número de modos disponibles con ganancia en la cavidad láser resonante. Su determinación conlleva consideraciones acerca de los modos del resonador y de la anchura de línea de la transición. Se tiene, para una cavidad de volumen  $V$  con anchura de línea de fluorescencia  $\Delta\nu$  [6] :

$$f = \frac{8 \nu^2 V}{c^3} \Delta\nu \quad (1.51)$$

Las ecuaciones (1.49) y (1.50) son las ecuaciones de velocidad buscadas, las cuáles gobiernan la oscilación láser. Los términos que aparecen en las mismas debidos a la emisión espontánea son despreciables excepto al comienzo de las oscilaciones. Estos términos son esenciales para que pueda empezar la oscilación, pero se pueden despreciar una vez que dicha oscilación se ha establecido.

#### 1.1.8. Propiedades de la radiación láser

##### 1.1.8.1. Coherencia

Al contrario que las fuentes convencionales de luz, los láseres emiten luz coherente. La coherencia presenta dos facetas: temporal y espacial. La coherencia temporal es una medida de la monocromaticidad de la radiación. La radiación emitida por los átomos correspondiente a una determinada transición no es estrictamente monocromática

ca, sino que consiste en un tren de ondas de longitud finita. Imaginemos entonces un punto de observación en el espacio desde el que podamos, con un instrumento imaginario, detectar cambios en las amplitudes y las fases sobre periodos de tiempo muy pequeños. Una vez que un tren de ondas ha pasado a través de nuestro punto de observación es imposible predecir cuando llegará el próximo ni decir nada acerca de su amplitud o fase. Ahora bien, una vez que la cabeza de un tren de ondas ha alcanzado nuestro punto de observación podemos hacer predicciones acerca de la amplitud y la fase a algún tiempo posterior, siempre que, desde luego, a ese tiempo todavía esté pasando el tren por el punto de observación. La capacidad de predecir la amplitud y la fase es la esencia de la coherencia. Se llama entonces tiempo de coherencia  $\Delta t$  al intervalo de tiempo durante el cual se pueden hacer predicciones acerca de la amplitud y la fase:  $\Delta t$  es, por tanto, el tiempo requerido para que el tren de ondas pase completamente a través del punto de observación. La longitud del tren de ondas, llamada longitud de coherencia, se encuentra asociada con el tiempo de coherencia, puesto que  $\Delta L = c \cdot \Delta t$ , donde hemos representado la longitud de coherencia por  $\Delta L$ .

Utilizando el análisis de Fourier se puede determinar que el tiempo de coherencia se encuentra relacionado con la anchura de banda espectral de la radiación emitida  $\Delta \nu$  por medio de la relación [7-(a)] :

$$\Delta t \approx \frac{1}{\Delta \nu} \quad (1.52)$$

de modo que, como decíamos arriba, el tiempo de coherencia mide la monocromaticidad de la radiación. En términos de la longitud de onda

$\lambda = c/\nu$ , se tiene:

$$\Delta\nu = c \Delta\lambda / \lambda^2$$

de donde  $\Delta L \approx \frac{c}{\Delta\nu} = \frac{\lambda^2}{\Delta\lambda}$  (1.53)

donde  $\lambda$  es la longitud de onda central del intervalo  $\Delta\lambda$ .

La coherencia espacial implica que entre dos puntos dados del frente de onda de la radiación hay una diferencia de fase constante, que se puede mantener durante largos intervalos de tiempo.

Se puede sumarizar, pues, lo que se entiende por coherencia temporal y por coherencia espacial de la radiación como sigue: cuando hablamos de coherencia temporal estamos diciendo que las fases relativas entre dos puntos en el tiempo deben permanecer constantes durante un largo intervalo de tiempo; la coherencia espacial, por otro lado, requiere que las fases relativas entre dos puntos en el espacio permanezcan constantes durante un largo intervalo de tiempo. En ambos casos, cuanto mayor sea el intervalo de tiempo mayor es la coherencia.

Las fuentes luminosas convencionales emiten fotones de manera no coordinada, al azar, y, típicamente,  $\Delta L < 10^{-2}$  cm. En contraste, los láseres pueden tener longitudes de coherencia de metros. Una de las propiedades que resultan de la coherencia espacial es el hecho de que la emisión láser esté confinada en haces estrechos de pequeña divergencia.

Una comparación entre las propiedades de la radiación láser coherente y las de la radiación convencional incoherente en distintas aplicaciones ópticas se puede encontrar en la referencia [8] .

### 1.1.8.2. Anchura espectral de la radiación láser

Es un hecho bien conocido el que la radiación emitida por un oscilador láser puede tener una anchura espectral mucho menor que la anchura de línea del modo en la cavidad resonante pasiva. Los cálculos muestran que la anchura de línea a media altura del espectro láser para un láser operando en estado estacionario es [4] :

$$\Delta\nu_{\text{láser}} = 2 \times \frac{\pi h\nu(\Delta\nu_{1/2})^2}{P_e} \times \frac{N_{2t}}{(N_{2t} - \frac{g_2}{g_1} N_{1t})} \quad (1.54)$$

donde  $\nu$  es la frecuencia de la emisión láser,  $\Delta\nu_{1/2}$  la anchura a media altura de la curva de respuesta de la cavidad resonante,  $P_e$  la potencia de salida del láser, y el subíndice  $t$  hace referencia a que  $N_1$  y  $N_2$  se miden en el umbral de oscilación láser. Este resultado fue obtenido originalmente por Schawlow y Townes [9] para el caso especial en que  $N_1 = 0$ . El factor numérico exacto en (1.54) depende del tipo de ensanchamiento. La expresión (1.54) es correcta para ensanchamiento homogéneo. En caso de ensanchamiento inhomogéneo desaparece el factor 2 [10] .

Un tratamiento riguroso de la anchura de la línea de la emisión láser basado en la teoría de Langevin de las fluctuaciones láser se puede encontrar en la referencia [3] . Deducciones simples de la expresión (1.54) basadas en el principio de incertidumbre o en consideraciones acerca de la variación de la fase de la onda electromagnética en la cavidad se pueden encontrar en [11] y [12] , respectivamente. Un tratamiento que es un compromiso entre los tratamientos avanzados y el

tratamiento del principio de incertidumbre se puede encontrar en [13]. La anchura espectral de la emisión láser viene determinada en último extremo por la emisión espontánea en el modo oscilante. La emisión espontánea ocurre a la frecuencia del campo láser oscilante pero con fase al azar. Es esta fluctuación de la fase la que determina en último término la anchura espectral de la radiación láser [11], [12], [13]. La ecuación (1.54) muestra que la anchura espectral de la radiación láser es inversamente proporcional a la potencia de salida del láser. Es to es de esperar, puesto que al incrementarse la potencia de salida también lo hace el campo dentro de la cavidad lo que quiere decir que un átomo excitado experimenta más probablemente una emisión estimulada que una desactivación por emisión espontánea.

La expresión (1.54) predice anchuras espectrales para la emisión láser extremadamente estrechas. Por ejemplo, Yariv [4] calcula que la anchura de banda  $\Delta\nu_{\text{láser}}$  para un láser de He-Ne de 1 mw de potencia de salida es  $\Delta\nu_{\text{láser}} = 5 \times 10^{-4}$  Hz. Ahora bien, es necesario tener en cuenta que el valor  $\Delta\nu_{\text{láser}}$  dado por (1.54) representa un límite teórico que no corresponde necesariamente a los valores observados en el laboratorio. La salida de los láseres operacionales se ve ensanchada por los cambios en la longitud del resonador debidos a fluctuaciones térmicas y acústicas y vibraciones mecánicas que originan corrimientos en las frecuencias de resonancia. Se han reseñado [10] medidas de anchuras espectrales desde varios cientos de hertz a varios kilohertz, dependiendo de la potencia de salida del láser.

#### 1.1.9. Métodos para obtener inversión de población (bombeo o excitación)

Es obvio que a fin de obtener inversión de población se deben bombear (excitar) los átomos o moléculas desde el estado fundamental hasta los estados excitados adecuados. Este proceso requiere energía de entrada que se puede suministrar por medio de absorción de radiación, colisiones o transformación de una forma de energía en otra [14].

#### 1.1.9.1. Absorción de radiación

Si se tiene una lámpara de destello que convierte energía eléctrica en luz de varias frecuencias, parte del espectro de la luz radiada por la lámpara corresponderá a la banda de absorción de los átomos a moléculas de que se trate. El resultado de la absorción de energía es excitar dichos átomos o moléculas. Si la vida media de los estados excitados es la adecuada obtendremos inversión de población.

Típicamente, las bandas de absorción de los átomos y moléculas son estrechas comparadas con el espectro de emisión de las lámparas de destello, no utilizándose, por tanto, gran parte de la energía suministrada por la lámpara, que cae fuera de dichas bandas de absorción. Además, la lámpara de destello emite en todas las direcciones y, como usualmente el medio láser se situa solo a un lado de la lámpara, la absorción tiene lugar en un pequeño ángulo sólido. Por estas razones la eficiencia típica de este método de bombeo está por debajo del 1%. Además, cuando se bombea un medio láser de gran volumen la densidad de inversión de población disminuye como una función de la distancia a la lámpara de destello debido a los efectos de la absorción. Esto puede originar variaciones en la intensidad del haz láser.



Este método de bombeo se ha utilizado con láseres de estado sólido, como los de Neodimio o Rubí, así como con láseres líquidos y de gas.

#### 1.1.9.2. Colisiones

Se puede transferir energía entre dos cuerpos por colisiones. A estos efectos se pueden utilizar electrones. Para la mayor eficiencia en la transferencia de energía a átomos y moléculas típicas, la energía de los electrones debe estar en el rango de unos pocos eV. En este rango de energías los electrones son capturados rápidamente por el medio láser, de modo que no pueden penetrar en un medio denso. Por esta razón este método se ha usado principalmente en láseres de gas.

Los electrones con la energía adecuada se pueden obtener fácilmente por medio de una descarga eléctrica a baja presión. A bajas presiones las descargas son estables y se pueden mantener tanto tiempo como se desee. Por este motivo muchos láseres continuos se bombean de acuerdo con este esquema. Láseres que utilizan este esquema de bombeo son los de He-Ne, Ar, Kr o CO<sub>2</sub>, este último con inversión de población entre niveles vibracionales.

#### 1.1.9.3. Transformación de energía

Si parte de la energía en una reacción química exotérmica se puede convertir en radiación láser, entonces el bombeo externo requerido será innecesario o pequeño. La energía de los reactantes en una reacción química se redistribuye entre los productos en forma de excitación electrónica, vibracional, rotacional y traslacional. Las transi-

ciones electrónicas originan emisión en las regiones ultravioleta o visible del espectro. Las moléculas excitadas vibracional y rotacionalmente radian usualmente en las regiones infrarroja y de microondas, respectivamente. La energía traslacional envuelve movimiento de moléculas de un lado a otro, con energía en forma de calor. La reacción química se puede iniciar óptica, eléctrica o térmicamente. En la sección 2.1 nos referiremos con algo más de detalle a este tipo de láseres, llamados láseres químicos.

En los láseres de semiconductores, por último, se convierte directamente energía eléctrica en radiación coherente.

Un tratamiento semiclásico detallado de los diversos tópicos tratados en esta sección se puede encontrar en las referencias [3] y [4]. Un tratamiento completo de la teoría del láser en su estadio más reciente se presenta en [3] .

## 1.2. RESONADORES OPTICOS

Un oscilador, mecánico, eléctrico u óptico, es un dispositivo en el cual la señal de salida es acoplada en fase a la entrada con suficiente ganancia como para compensar las pérdidas: la señal de salida retroalimenta la entrada y mantiene las oscilaciones. Un concepto análogo es usado para construir un oscilador laser. En el caso de la mayoría de los osciladores láser el elemento de retroalimentación está constituido por los espejos reflectantes que cierran a ambos lados la cavidad de Fabry-Perot. Un oscilador láser es, pues, esencialmente una cavidad resonante operando a frecuencias ópticas. Como los resonadores empleados en los láseres típicos tienen dimensiones grandes com-

paradas con las longitudes de onda ópticas, habrá, en general, un gran número de modos próximamente espaciados oscilando en la cavidad. En su artículo clásico proponiendo la operación láser, Schawlow y Townes [9] sugerían que para un láser lo bastante estable las no linealidades usuales permitirían al modo más favorecido suprimir las oscilaciones en los modos menos favorecidos y obtener oscilación en un único modo. No obstante, se encontró que los láseres oscilaban en muchos modos, lo que indicaba que el medio amplificador situado dentro del resonador exhibía ganancia para diversas frecuencias correspondientes a los diversos modos.

#### 1.2.1. Modos en resonadores láser

Un modo en un resonador se puede definir como un campo de radiación con una configuración autoconsistente. O sea, la distribución del campo se reproduce a sí misma después de un viaje de ida y vuelta en el resonador. Los modos en un resonador formado por un par de espejos coaxiales, planos o esféricos, se han estudiado ampliamente [15], [16], [17], [18]. Existen conjuntos de modos con la misma distribución espacial de energía en un plano perpendicular al eje del resonador, pero con diferentes números de semilongitudes de onda a lo largo del eje del resonador. Son los llamados modos longitudinales del resonador y están espaciados en frecuencias en la cantidad  $c/2L$ , donde  $c$  es la velocidad de la luz y  $L$  la separación entre los espejos del resonador. Correspondiendo a cada modo longitudinal (o sea, para un número dado de semilongitudes de onda a lo largo del eje del resonador) existe un conjunto de modos que tienen diferentes distribuciones de energía en el plano transversal al eje del resonador. Son los llamados modos trans-

versales del resonador.

El problema de determinar los modos transversales ha sido atacado de diferentes maneras. Una de ellas consiste en buscar soluciones simples de las ecuaciones de Maxwell que tomen la forma de haces estrechos y hacer que las superficies de los espejos reflectantes intersecten al haz según frentes de fase (o sea perpendicularmente en cada punto del frente de ondas a la dirección local de propagación), con lo que nos aseguramos de este modo que la onda se refleje hacia atrás exactamente sobre sí misma [4]. Otro método [15] consiste en utilizar la formulación escalar del principio de Huygens para determinar el campo originado en un espejo por la iluminación procedente del otro. La configuración del campo que regresa tras la reflexión se calcula del mismo modo y se exige que coincida, salvo una constante, con la configuración inicial. Las soluciones de la ecuación integral resultante proporcionan los modos y las pérdidas por difracción [16], [17]. Este método se puede adaptar a cálculos numéricos con computador para situaciones en las que son inviables los métodos analíticos. Los resultados que proporcionan los dos métodos señalados son similares. El primero de dichos métodos procede esencialmente como sigue [4], [19].

La propagación de la luz en el espacio libre se puede describir por medio de la ecuación de ondas escalar. Una componente  $\mu$  del campo de luz coherente satisface la ecuación:

$$\frac{\partial^2 \mu}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mu}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \mu}{\partial z^2} + k^2 \mu = 0 \quad (1.55)$$

donde  $k = 2\pi/\lambda$  es la constante de propagación de una onda plana de lon

gitud de onda  $\lambda$ .

Para un haz cuya desviación con respecto a una onda plana no es demasiado grande se puede escribir, para luz viajando en la dirección + z:

$$u = \psi(x, y, z) \exp(-ikz) \quad (1.56)$$

Llevando (1.56) a (1.55) obtenemos que  $\psi(x, y, z)$  es solución de la ecuación:

$$\frac{\partial^2 \psi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \psi}{\partial y^2} - 2ik \frac{\partial \psi}{\partial z} = 0 \quad (1.57)$$

donde hemos supuesto que la variación longitudinal de  $\psi$  es bastante pequeña como para que

$$k\psi' \gg \psi'' \ll k^2\psi \quad (\psi' = \frac{\partial \psi}{\partial z}; \psi'' = \frac{\partial^2 \psi}{\partial z^2})$$

La solución más general de la ecuación (1.57) sustituida en (1.56) proporciona:

$$u = A_0 \left( \frac{w_0}{w} \right) H_m \left( \frac{x\sqrt{2}}{w} \right) H_n \left( \frac{y\sqrt{2}}{w} \right) \exp \left[ -i(kz - \phi) - (x^2 + y^2) \left( \frac{1}{w^2} + \frac{ik}{2R} \right) \right] \quad (1.58)$$

La ecuación (1.58) describe lo que se conoce como un haz Gaussiano. En ella,  $A_0$  representa una constante de normalización que depende de la intensidad del haz luminoso. El valor de  $w$  es una medida del radio del modo fundamental ( $m=0, n=0$ ) y varía con  $z$  de acuerdo con la relación:

$$w^2 = w_0^2 \left[ 1 + \left( \frac{\lambda z}{\pi w_0^2} \right)^2 \right] \quad (1.59)$$

donde  $w_0$  es el mínimo radio del haz en el modo fundamental,  $H_a(b)$  es el polinomio de Hermite de orden  $a$ -ésimo y argumento  $b$ . El símbolo  $R$

representa el radio de curvatura del frente de onda del haz y varía con  $z$  de acuerdo con la expresión:

$$R = z \left[ 1 + \left( \frac{\pi w_0^2}{\lambda z} \right)^2 \right] \quad (1.60)$$

El valor de  $\phi$  es una medida del corrimiento de fase del haz gaussiano con respecto a una onda plana de la misma longitud de onda.

Viene dado por:

$$\phi = (1 + m + n) \arctg \left( \frac{\lambda z}{\pi w_0^2} \right) \quad (1.61)$$

La variación transversal de  $\mu$  depende de  $m$  y  $n$ , el orden de los polinomios de Hermite. Como ya hemos indicado, para  $m=n=0$  la ecuación (1.58) describe el llamado modo transversal fundamental. La función de distribución de la amplitud es en este caso una función Gaussiana con radio  $w$  a la altura  $1/e$  (figura 5). En la "cintura" del haz el radio del mismo vale  $w_0$  y el frente de onda es plano. El haz se expande con un ángulo de difracción en el campo lejano  $\theta(\infty) = \lambda / \pi w_0$  [20] (figura 6). Los modos transversales de orden más alto, caracterizados por los números  $n$  y  $m$ , tienen distribuciones de amplitud más complicadas en el plano  $xy$ . Estos modos se suelen indicar con la nomenclatura  $TEM_{nm}$  por analogía con los modos en una guía de ondas. La figura 7 muestra la distribución de amplitud de algunos modos para valores bajos del número de orden  $m$ . Vemos que según se va hacia modos de orden alto la distribución de energía se ensancha, lo que va a permitir discriminar los modos transversales de orden alto en un resonador láser.

De acuerdo con nuestra definición de un modo en un resonador como una configuración del campo autoconsistente, un haz Gaussiano

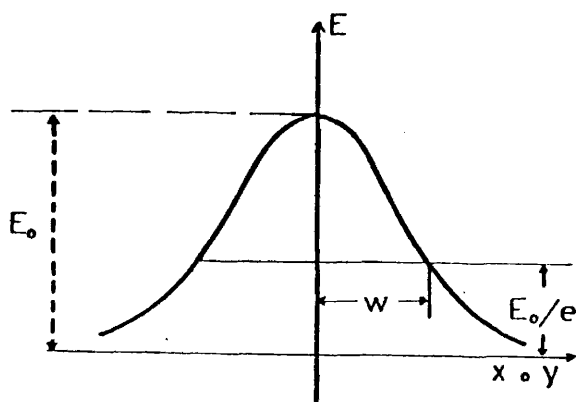


Figura 5.- Distribución transversal de amplitud de un haz Gaussiano [19] .

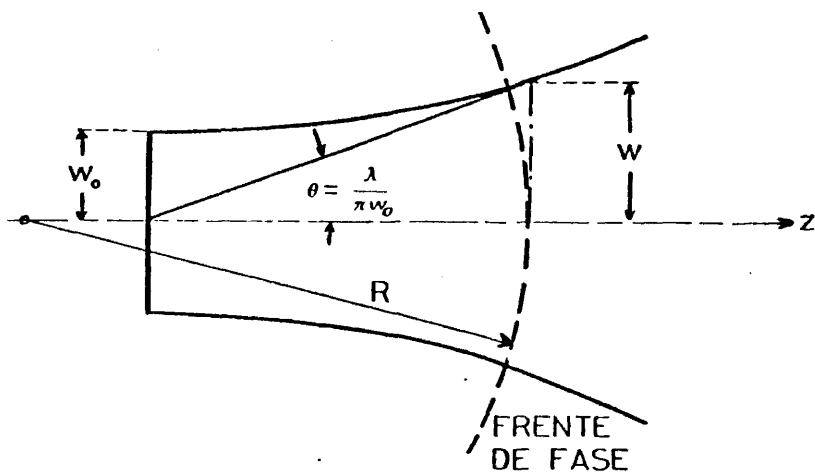


Figura 6.- Ensanchamiento de un haz Gaussiano en función de la coordenada de propagación  $z$  [19] .

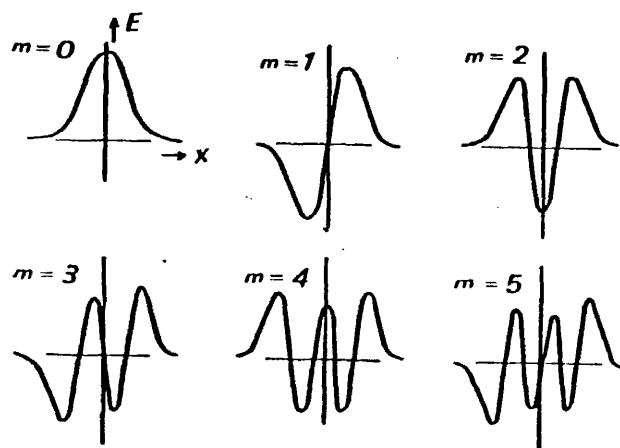


Figura 7.- Distribución transversal de amplitud de algunos modos de orden bajo del haz Gaussiano. Los modos son del tipo  $TEM_{m0}$  [19] .

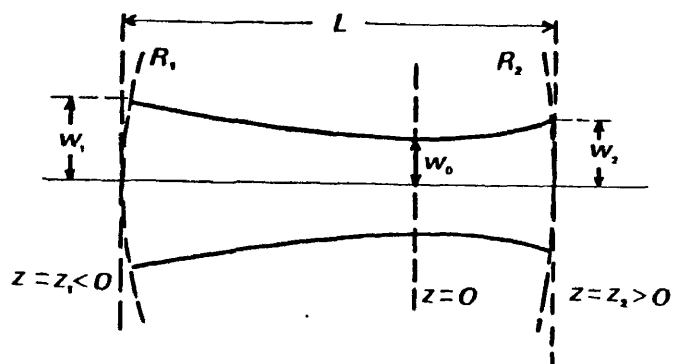


Figura 8.- Parámetros de un modo transversal en un resonador estable, [19].



será resonante en un resonador láser si, (1) la curvatura de su frente de onda coincide con la curvatura de los espejos de modo que el haz sea reflejado sobre sí mismo y, (2) su longitud de onda es tal que el desplazamiento de la fase tras un viaje de ida y vuelta en el resonador es un múltiplo entero de  $2\pi$ . En consecuencia, dado un haz como el descrito por la ecuación (1.58) podemos formar un resonador óptico simplemente insertando en los puntos  $z_1$  y  $z_2$  (figura 8) dos reflectores cuyo radio de curvatura coincida con el de los frentes de fase del haz en esos puntos ( los frentes de onda son, con mucha aproximación, esféricos [4] ). Alternativamente, dados dos espejos esféricos con radios de curvatura  $R_1$  y  $R_2$  y separados por una distancia  $L$  podemos, bajo ciertas condiciones que veremos más adelante, ajustar la posición  $z=0$  (tomamos como  $z=0$  la posición de  $w_0$ , figura 8) y el parámetro  $w_0$  de modo que los espejos coincidan con dos frentes de onda esféricos del haz definido por la posición de su cintura y el valor de  $w_0$ .

La curvatura de los frentes de onda en las posiciones de los espejos  $z = z_1$  y  $z = z_2$  es:

$$R_1 = z_1 + \frac{z_0^2}{z_1} \quad (1.62)$$

$$R_2 = z_2 + \frac{z_0^2}{z_2} \quad (1.63)$$

$$z_0 = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad (1.64)$$

y la convención que adoptamos para el signo de  $R$  es que  $R(z)$  es negativo si el centro de curvatura ocurre en  $z' > z$  ( o sea, la curvatura

del espejo se toma positiva cuando el centro de curvatura está a la izquierda del espejo).

A partir de (1.62) y (1.63) se encuentra:

$$z_1 = \frac{R_1}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{R_1^2 - 4 z_0^2} \quad (1.65)$$

$$z_2 = \frac{R_2}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{R_2^2 - 4 z_0^2} \quad (1.65)$$

Para un valor dado de  $w_0$  podemos entonces usar (1.65) a fin de encontrar las posiciones en que situar espejos con radios de curvatura  $R_1$  y  $R_2$ .

En la práctica lo más frecuente es partir de espejos con radios de curvatura  $R_1$  y  $R_2$  dados y una separación  $L$  entre los mismos. El problema consiste en encontrar  $w_0$ , su localización con respecto a los espejos y los tamaños  $w_1$  y  $w_2$  de los radios del haz luminoso en los espejos. Tomando el espaciado entre los espejos como  $L = z_2 - z_1$  y resolviendo (1.62) y (1.63) para  $z_0^2$  se obtiene:

$$z_0^2 = \frac{L(-R_1-L)(R_2-L)(R_2-R_1-L)}{(R_2 - R_1 - 2L)^2} \quad (1'66)$$

Una vez conocido  $z_0$  a partir de esta expresión podemos determinar el radio mínimo  $w_0$  del modo fundamental por medio de (1.64) y, a continuación, hallar  $w_1$  y  $w_2$  usando (1.59).

Un caso especial de resonador es aquél en el cuál los dos espejos tienen el mismo radio de curvatura. El frente de onda plano al que ocurre el mínimo radio del haz tiene entonces lugar, por simetría, en

el punto medio entre los dos espejos, de modo que estos quedan situados simétricamente con respecto a  $z = 0$  (de aquí el nombre de resonador simétrico con que también se conoce este tipo de resonador). Poniendo  $R_2 = -R_1 = R$  en (1.66) se tiene ahora:

$$z_o^2 = \frac{(2R-L)L}{4} \quad (1.67)$$

$$w_o = \left( \frac{\lambda z_o}{\pi} \right)^{1/2} = \left( \frac{\lambda}{\pi} \right)^{1/2} \left( \frac{L}{2} \right)^{1/2} \left( R - \frac{L}{2} \right)^{1/4} \quad (1.68)$$

Llevando (1.68) a (1.59) con  $z = L/2$  obtenemos para el radio del haz en los espejos:

$$w_{1,2} = \left( \frac{\lambda L}{2\pi} \right)^{1/2} \left[ \frac{2R^2}{L(R-L/2)} \right]^{1/4} \quad (1.69)$$

Como ejemplo numérico, consideremos el resonador láser usado por nosotros en nuestros experimentos. Utilizamos un resonador simétrico formado por espejos de radios de curvatura  $R = 2$  m, separados por una distancia  $L = 1,10$  m. La longitud de onda de la radiación que va a oscilar en la cavidad es  $\lambda = 1,315 \mu\text{m}$ . Con estos datos y aplicando (1.68) y (1.69) se tiene:

$$w_o = 0,611 \text{ mm}$$

$$w_{1,2} = 0,718 \text{ mm}$$

El ángulo de difracción (divergencia del haz) en el campo lejano es:

$$\theta(\infty) = \frac{\lambda}{\pi w_o} = 0,685 \times 10^{-3} \text{ rad} = 2,350 \text{ minutos de arco}$$

Hasta ahora hemos considerado únicamente la dependencia de

las características espaciales del modo con los parámetros del resonador (radios de curvatura de los espejos y separación entre los mismos). Otra importante consideración es el determinar las frecuencias de resonancia de un modo dado. Estas frecuencias se van a determinar a partir de la condición de que el corrimiento de la fase después de una oscilación completa debe ser un múltiplo de  $2\pi$ . De acuerdo con (1.58), el corrimiento de fase sobre el eje para el modo  $TEM_{mn}$  es:

$$\theta_{m,n}(z) = kz - \phi \quad (1.70)$$

donde  $\phi$  está dada por (1.61). Dado entonces un resonador con espejos esféricos situados en las posiciones  $z_1$  y  $z_2$ , la condición de resonancia del modo  $m,n$  se puede escribir como (no consideramos la posibilidad de corrimiento de fase por reflexión; en cualquier caso esta corrección no afectaría a los resultados que siguen):

$$\theta_{m,n}(z_2) - \theta_{m,n}(z_1) = q\pi \quad (1.71)$$

donde  $q$  es un entero. Usando (1.70), (1.61) y (1.64) la condición (1.71) conduce a:

$$k_q L - (m+n+1) \left[ \arctg \frac{z_2}{z_0} - \arctg \frac{z_1}{z_0} \right] = q\pi \quad (1.72)$$

con  $L = z_2 - z_1$ . De aquí se sigue que:

$$k_{q+1} - k_q = \frac{\pi}{L}$$

o, usando que  $k = 2\pi\nu/c$ :

$$\nu_{q+1} - \nu_q = \frac{c}{2L} \quad (1.73)$$

que nos da el espaciado entre modos longitudinales correspondientes a un mismo modo transversal.

Veamos ahora el efecto de variar los índices transversales del modo,  $m$  y  $n$ , manteniendo fijo el índice  $q$  (longitudinal). La expresión (1.72) nos dice que las frecuencias de resonancia dependen de  $m+n$  y no de  $m$  y  $n$  separadamente, de modo que para un  $q$  dado todos los modos con el mismo valor de  $m + n$  son degenerados (o sea, con las mismas frecuencias de resonancia). Considerando (1.72) a dos diferentes valores de  $m + n$ , se tiene:

$$k_1 L - (m+n+1)_1 \left[ \arctg \frac{z_2}{z_0} - \arctg \frac{z_1}{z_0} \right] = q\pi$$

$$k_2 L - (m+n+1)_2 \left[ \arctg \frac{z_2}{z_0} - \arctg \frac{z_1}{z_0} \right] = q\pi$$

y restando:

$$(k_1 - k_2) L = \left[ (m+n+1)_1 - (m+n+1)_2 \right] \left[ \arctg \frac{z_2}{z_0} - \arctg \frac{z_1}{z_0} \right] \quad (1.74)$$

de donde:

$$\Delta v = \frac{c}{2L} \Delta(m+n) \left[ \arctg \frac{z_2}{z_0} - \arctg \frac{z_1}{z_0} \right] \quad (1.75)$$

para un cambio  $\Delta v$  en la frecuencia de resonancia causado por un cambio  $\Delta(m+n)$  en la suma  $(m+n)$ .

Hasta ahora hemos supuesto implícitamente que los espejos que cierran el resonador eran lo bastante extensos como para interceptar todo el haz luminoso. En cualquier resonador láser real una parte del haz láser se perderá debido al tamaño finito de los espejos. Para algunos valores de la curvatura de los espejos y espaciado entre los mismos el tamaño del haz en los espejos se aproxima a infinito, por lo que se originarán pérdidas por difracción muy altas. Estas configuraciones

Las altas pérdidas se conocen como geometrías de resonador inestables. En la figura 9 se muestran las regiones estables e inestables para un resonador con espejos de radios de curvatura  $R_1$  y  $R_2$  separados por una distancia  $L$ .

Para tener un oscilador láser es necesario introducir dentro del resonador un medio que exhiba ganancia. La energía crecerá entonces en aquellos modos del resonador para los que la ganancia neta exceda las pérdidas. Las pérdidas en el resonador pueden ser pérdidas por transmisión en los espejos, pérdidas de difracción y pérdidas por absorción y dispersión, tanto en el medio láser como en los espejos. La figura 10 muestra esta situación para el caso en que varios modos longitudinales correspondientes a un mismo modo transversal están por encima del umbral de oscilación. En el caso más general también oscilarán otros conjuntos de modos longitudinales correspondientes a otros modos transversales. Entonces, aunque la anchura de línea para un único modo láser puede ser tan estrecha como una fracción de hertz (apartado 1.1.8.2), la anchura de línea real de la radiación de un láser sin control de modos será gobernada por la anchura de la curva de ganancia, que puede ser de varios megahertz para láseres de gas en la región visible del espectro y mucho mayor para láseres de estado sólido.

La salida total del láser como una función del tiempo depende de las amplitudes, frecuencias y fases de los modos oscilantes. Como los diversos modos oscilantes pueden cambiar sus relaciones de fases como una función del tiempo debido a fluctuaciones al azar y efectos en el medio láser, la salida variará de un modo incontrolado. Una manera de controlar la salida del láser consiste en fijar las amplitudes y las fases de los modos (lo que se conoce como "mode-locking"), técnica que

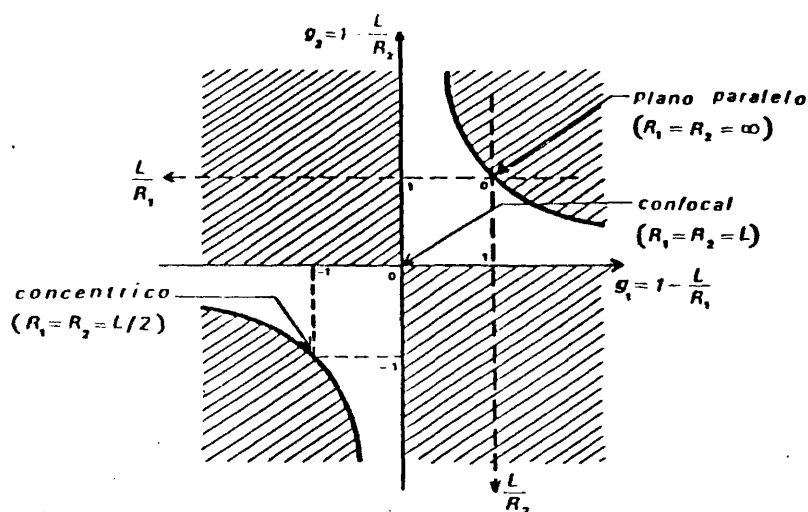


Figura 9.- Diagrama de estabilidad. Los sistemas de resonadores inestables caen en la región rayada. Convenio de signos:  $R_1$  ( $R_2$ ) es positivo cuando el centro de curvatura del espejo 1 (2) está en la dirección del espejo 2 (1) [18].

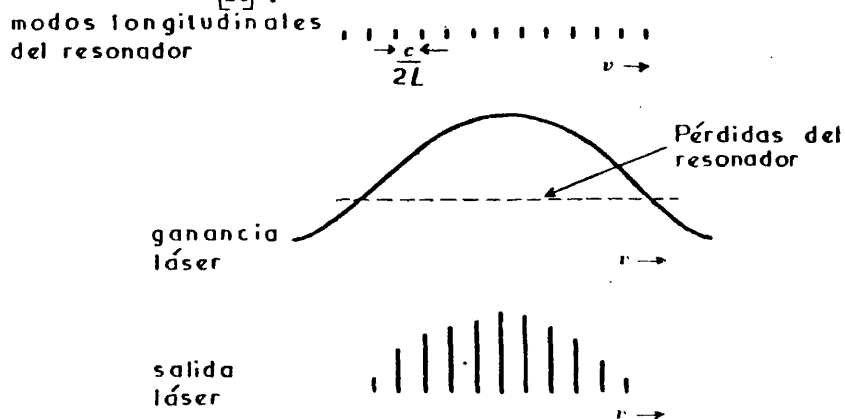


Figura 10.- Oscilación láser en varios modos longitudinales [19].

es muy usada cuando se desea obtener un tren repetitivo de pulsos luminosos cortos [3], [4], [21]. Alternativamente, se pueden usar técnicas de selección de modos a fin de obtener salida láser de frecuencia única [5],[19].

La presencia del medio láser afectará algo a la distribución de modos transversales en el resonador, si bien Fox y Li [22] han mostrado que en láseres de gas de ganancia moderadamente alta este efecto es despreciable. Para la mayoría de los láseres, el principal efecto de la presencia del medio con ganancia sobre los modos oscilantes es el de originar competición de modos. Como un átomo dado puede contribuir con su energía solamente a un modo determinado, quedando entonces esta energía inutilizada para los otros modos, si uno de los modos tiene menos pérdidas que los otros podrá competir más favorablemente por la energía disponible, y crecerá a expensas de los modos menos favorecidos [5], [23], [24], [25]. La competición de modos se puede usar, por tanto, para obtener oscilación láser en un único modo a base de incrementar las pérdidas de todos los modos excepto del que nos interesa. En particular, este procedimiento se puede utilizar para forzar al láser a operar en el modo transversal de menor orden (modo unifase o fundamental). La experiencia muestra que el láser tiende a operar en uno o más modos de orden alto si la ganancia se lo permite [23]. Una manera de forzar al láser a operar en el modo fundamental es que todos los modos excepto el fundamental tengan pérdidas de difracción lo bastante altas. Esto se puede conseguir fácilmente sin más que tener en cuenta que los modos transversales más y más altos tienen su energía menos y menos concentrada a lo largo del eje del resonador (figura 7). Por es-



ta razón, un diafragma o abertura circular situada en el resonador interrumpe una fracción de energía progresivamente mayor según el orden de los modos se va haciendo más alto, incrementándose progresivamente las pérdidas de difracción. Entonces, se podría obtener operación en el modo transversal fundamental situando dentro del resonador láser un diafragma con una abertura tal que todos los modos excepto el fundamental experimenten pérdidas de difracción mayores de la ganancia. Necesitaríamos, pues, usar en principio la mayor abertura compatible con que las pérdidas del modo de segundo orden sean mayores que la ganancia del láser. En la práctica, y debido a la competición de modos, se puede usar frecuentemente una abertura algo mayor. Este es el método más corriente de selección de modos transversales en los láseres de gas de ganancia no demasiado alta. Las pérdidas para un diámetro dado de la abertura se pueden encontrar, por ejemplo, a partir de las curvas dadas en [26]. En general, sin embargo, el tamaño de la abertura se va simplemente ajustando hasta que se obtiene operación en el modo transversal fundamental.

El conseguir que la oscilación láser tenga lugar en el modo transversal fundamental es importante a efectos de obtener una buena calidad (coherencia espacial) del haz láser. Los modos de orden alto, en efecto, presentan uno o más cambios en su fase a lo largo del frente de ondas a causa de que sus amplitudes cambian de signo (figura 7). Los modos de orden alto originarán, por tanto, mayor divergencia en el haz que el modo fundamental, lo que conduce a una peor coherencia espacial de la radiación láser [27]. Por tanto, un diafragma que origine operación en un solo modo transversal también mejora la calidad del haz láser.

### 1.2.2. Configuraciones de los resonadores láser

Tradicionalmente se han venido usando diversos tipos de resonadores ópticos que suministran la retroalimentación necesaria para el mantenimiento de la oscilación láser. La mayoría de estos resonadores láser son "abiertos" esto es, consistentes en un par de espejos opuestos. Los primeros resonadores abiertos usaban espejos planos, paralelos entre sí, pero pronto dejaron paso a resonadores más estables que utilizan espejos esféricos. En un resonador estable la curvatura de los espejos se escoge de modo que un rayo que diverja fuera del eje óptico del resonador retorne a él por la acción focalizadora de los espejos. Esto reduce grandemente las pérdidas de difracción con respecto al caso en que se usan resonadores con espejos plano-paralelos [15], [16]. Existe un límite para la divergencia del haz fuera del eje óptico, sobrepasado el cual la acción de los espejos es insuficiente para focalizar el haz, de modo que éste diverge más a cada oscilación y termina por salirse fuera de la cavidad. En el caso más favorable (configuración confocal, ver mas adelante) la divergencia máxima permitida para un resonador de un metro de longitud es de 1,5 min de arco (lo que equivale a 0,44 mm de desviación por metro de longitud [28]).

Como ya hemos indicado en el apartado anterior, para una configuración dada no hay oscilación estable con cualquier combinación de radios de espejos y separación entre los mismos, sino que dichos parámetros tienen que ajustarse al diagrama de estabilidad (figura 9). Como existen varias configuraciones posibles que se ajustan a dicho diagrama vamos a discutir las ventajas e inconvenientes de las más importantes, que hemos sumariado en la figura 11 [28], [29], [30].

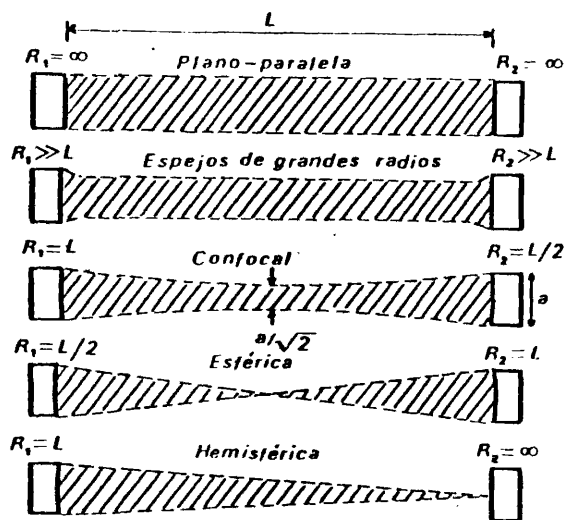


Figura 11.- Configuraciones del resonador. La distribución de la radiación en la cavidad para un frente de onda unifase se muestra como la parte rayada [28] .

#### 1.2.2.1. Resonador plano-paralelo

El resonador plano-paralelo ha sido analizado a fondo por Fox y Li [15] quienes mostraron que la salida del mismo no es un frente de onda plano, sino que tiene una ligera curvatura debida a las grandes pérdidas por difracción en los bordes de los espejos. La razón entre las pérdidas de difracción correspondientes al modo  $TEM_{01}$  y las correspondientes al modo  $TEM_{00}$  en el resonador plano-paralelo fue también computada por Fox y Li, quienes encontraron que la misma es de aproximadamente 2 (en términos de porcentajes de pérdidas por paso a lo largo del resonador) para un amplio rango de dimensiones del resonador. En contraste, esta razón es mucho mayor para otras configuraciones ( del orden de 25 para el resonador confocal, por ejemplo). En consecuencia, el resonador plano-paralelo es muy susceptible a la presencia de partículas de polvo e imperfecciones, lo que hace que la oscilación ocurra muy fácilmente en modos altos con preferencia al modo fundamental. Así, por ejemplo, este resonador es extremadamente sensible a la calidad óptica de los espejos y de las ventanas al ángulo de Brewster que limitan usualmente el tubo láser en los láseres de gas, de modo que la más ligera curvatura en la dirección convexa hace las pérdidas de difracción extremadamente altas y el láser cesa de operar. Tal curvatura convexa no tiene que ocurrir necesariamente en los espejos, siendo suficiente un ligero efecto de lente en las ventanas al angulo de Brewster. Por estas razones, los espejos y ventanas usados en una configuración plano-paralela tienen que ser extremadamente planos, a aproximadamente  $1/100$  de la longitud de onda. Esto se ve claramente en el diagrama de estabilidad (figura 9): la configuración plano-paralela cae en el

límite entre las regiones de grandes y pequeñas pérdidas, de modo que cualquier pequeña variación en la curvatura de los espejos hace que el sistema entre en la región de altas pérdidas.

El resonador plano-paralelo es asimismo extremadamente susceptible a un mal alineamiento de los espejos (o sea, a pequeñas desviaciones en la inclinación de los espejos: se dice que los dos espejos están alineados cuando rectas imaginarias normales al centro de cada espejo coinciden). Esto se puede comprobar a partir del argumento familiar de que si la reflectividad de los espejos es  $R$ , entonces el haz debe atravesar en promedio  $1/(1-R)$  veces la cavidad antes de que finalmente abandone la misma. Para las dimensiones típicas de 1 m de longitud del resonador, diámetro de los espejos de 1 cm y reflectividad del 99%, el paralelismo requerido es de 1 segundo de arco [28]. Esto quiere decir que el resonador no es solamente muy difícil de alinear, sino que es también muy sensible a las vibraciones y efectos térmicos.

La única ventaja de esta configuración es que el volumen del modo es grande: el modo llena toda la cavidad láser y, por tanto, se puede hacer uso potencialmente de todos los átomos excitados dentro del medio láser. En la práctica, sin embargo, los resonadores plano-paralelos tienen siempre potencia reducida y alto umbral debido a sus grandes pérdidas de difracción. Las ventajas de un gran volumen y, por tanto, alta potencia de salida, son más aprovechadas en la configuración de grandes radios que veremos a continuación.

#### 1.2.2.2. Espejos de grandes radios de curvatura

Es intuitivamente claro que si se hace coincidir el radio de curvatura del frente de onda con el de los espejos que forman el resonador se tendrán menos pérdidas y, por tanto, se obtendrá una salida más estable y de mayor potencia. Ahora bien, la expresión (1.60), que proporciona el valor del radio de curvatura del frente de onda, conduce a que, con unos valores típicos de  $w_0 = 1 \text{ mm}$ ,  $\lambda = 0,5 \text{ }\mu\text{m}$  y  $z = 25 \text{ cm}$  el radio de curvatura de los espejos debería ser mayor que 150 m. Se requerirían, pues, espejos virtualmente planos, con las correspondientes dificultades de alineamiento. Además, es extremadamente difícil el hacer espejos con radios de curvatura mayores que 20 o 30 m. En la práctica se usan para esta configuración espejos de 20 m de radios de curvatura o menos. Estos espejos son algo más fáciles de alinear que los planos (la precisión requerida en el alineamiento es ahora de aproximadamente 10 segundos de arco [28]) y el modo llena, comparativamente, gran parte del volumen del medio láser. Los láseres que requieren alta potencia de salida suelen utilizar esta configuración.

Comparando las expresiones (1.68) y (1.69) y teniendo en cuenta que en esta configuración  $R \gg L$ , se tiene inmediatamente que  $w_{1,2} \approx w_0$  de modo que la expansión del haz dentro del resonador es pequeña y, además, cualquier cambio pequeño en  $L$  no afecta el valor de  $w_{1,2}$ .

#### 1.2.2.3. Resonador confocal

Si el radio de los espejos se reduce todavía más hasta que sus focos coincidan o, en el caso de que ambos espejos tengan el mismo radio de curvatura, hasta que sus radios sean iguales a la separación entre los espejos, el resonador se dice que es confocal. El reso

nador confocal es el que proporciona el mínimo valor para el radio del modo en la posición de los espejos para una longitud  $L$  del resonador dada. En efecto, consideremos por simplicidad el caso en que ambos espejos tienen el mismo radio de curvatura. Para un resonador cualesquiera el valor de  $w$  en los espejos viene dado por la expresión (1.69). El valor de  $R$  que hace mínimo a  $w$  se obtiene derivando la expresión (1.69) con respecto a  $R$  e igualando el resultado a cero:

$$0 = \frac{dw}{dR} = \left( \frac{\lambda L}{2\pi} \right)^{1/2} \left[ \frac{2R(R-L)}{L(R-1/2)^2} \right] \Rightarrow R=L$$

que corresponde al resonador confocal.

Haciendo  $R = L$  en (1.68) y (1.69) se obtiene para el resonador confocal simétrico:

$$w_0 = \left( \frac{\lambda R}{2\pi} \right)^{1/2} \quad (1.76)$$

$$w_{1/2} = \left( \frac{\lambda R}{\pi} \right)^{1/2} \quad (1.77)$$

y, por tanto,

$$w_{1,2} = \sqrt{2} w_0 \quad (1.78)$$

La relación (1.78) nos indica que el resonador confocal es todavía bastante eficiente a la hora de hacer uso del volumen con los átomos excitados. El hecho de que este resonador proporcione la mínima dimensión del modo para una longitud dada del resonador se utiliza en algunos tipos de láseres, de ganancia intrínseca muy alta, en los que puede ser deseable mantener el diámetro del tubo láser tan pequeño como sea posible.

Para obtener la relación entre las dimensiones del modo y el espaciado de los espejos para configuraciones próximas a la confocal, hagamos en (1.69)  $L = R + \Delta$ , con lo que se obtiene:

$$w_{1,2} = \left( \frac{\lambda R}{\pi} \right)^{1/2} \left( \frac{R + \Delta}{R - \Delta} \right)^{1/4} \quad (1.79)$$

que nos indica que, al igual que en el caso de grandes radios, la dimensión del modo varía lentamente con el espaciado entre los espejos para radios de curvatura de los espejos fijos. No obstante, la existencia de esta dependencia proporciona al usuario un pequeño grado de libertad a la hora de escoger las dimensiones del modo a base de variar la separación entre los espejos.

Una desventaja del resonador confocal cuando se usan espejos del mismo radio de curvatura es aparente a la vista del diagrama de estabilidad (Figura 9): el sistema confocal se encuentra en este caso en el límite entre las regiones de grandes y pequeñas pérdidas, por lo que es muy susceptible a la calidad de los espejos o de las ventanas al ángulo de Brewster. Es, por tanto, esencial ajustar la separación entre los espejos a fin de asegurar la operación en la región estable.

Entre las principales ventajas del resonador confocal se encuentran el que es la configuración más fácil de alinear (para un resonador de 1 m de longitud la precisión requerida es de solo 1,5 minutos de arco [28]) y que presenta la máxima discriminación contra modos transversales de orden alto [26]: la ganancia del modo  $TEM_{00}$  es, al menos, 25 veces mayor que para los modos más altos [15].



#### 1.2.2.4. El resonador concéntrico

El resonador concéntrico se forma reduciendo el radio de los espejos todavía más, hasta que la suma de los radios es igual a la separación entre los espejos. Cuando los espejos tienen el mismo radio de curvatura se suele llamar resonador esférico. La correspondiente configuración consta de un modo cuyas dimensiones son bastante grandes en cada espejo, y que es focalizado por los espejos en un punto de tamaño limitado por la difracción. En el diagrama de estabilidad (Figura 9) esta configuración aparece en el límite entre las regiones de pequeñas y grandes pérdidas. Este sistema es tan difícil de alinear como el sistema con espejos plano-paralelos, razón por la que es raramente usado para láseres de gas, si bien presenta ciertas ventajas en láseres de estado sólido [30] .

#### 1.2.2.5. El resonador hemisférico

El resonador hemisférico consiste en un espejo esférico y uno plano situado aproximadamente en el centro de curvatura del esférico. El modo resultante tiene un diámetro relativamente grande en el espejo esférico y se focaliza en un punto, de tamaño limitado por la difracción, en el espejo plano.

La geometría del resonador hemisférico se deduce inmediatamente de las expresiones (1.59) y (1.60). Como ahora  $w_0$  ocurre en la posición del espejo plano se tiene de (1.60) poniendo  $z = L$ :

$$w_0^4 = \left( \frac{\lambda}{\pi} \right)^2 L(R-L) \quad (1.80)$$

Llevando (1.80) a (1.59) con  $z=L$ :

$$w^4 = \left( \frac{\lambda}{\pi} \right)^2 \frac{R^2 L}{R-L} \quad (1.81)$$

La diferencia entre el tamaño del modo en ambos espejos es evidente de estas expresiones. Es también claro a partir de las mismas que  $R$  no debe ser exactamente igual a  $L$ , lo que originaría un diámetro del modo "infinito" en el espejo curvo (pérdidas de difracción extremadamente altas) y un diámetro "cero" en el espejo plano. En la práctica se toma  $L$  ligeramente menor que  $R$  de modo que se obtenga un valor finito y razonable para  $w$ , lo que conduce a pérdidas de difracción pequeñas. En el caso en que  $L > R$  se comprueba inmediatamente en el diagrama de estabilidad (Figura 9) que el sistema trabaja en la región de altas pérdidas.

De la ecuación (1.81) se ve fácilmente que un pequeño cambio en la separación entre los espejos ejerce considerablemente efecto sobre el valor de  $w$ . En consecuencia, el resonador hemisférico es útil cuando es necesaria la eliminación de modos transversales de orden alto a base de variar el diámetro del modo. Otra ventaja del resonador hemisférico consiste en que su sensibilidad a la alineación es casi igual que la del sistema confocal, lo que quiere decir que es fácil de alinear. Esto se ve claramente del hecho de que un error en el ajuste del espejo plano simplemente origina el que se use una parte más pequeña del espejo curvo para formar una cavidad útil, pero no impide la oscilación láser sobre esa porción más pequeña del espejo curvo siempre que las pérdidas de difracción lo permitan.

La única desventaja del oscilador hemisférico con respecto a

los otros tipos que hemos discutido se refiere a su potencia de salida. Dado que el modo tiene forma de cono (Figura 11) intersecta únicamente un tercio del volumen total del resonador láser, por lo que la potencia de salida esperada será claramente menor de lo que se podría obtener en un caso óptimo, tal como ocurre, por ejemplo, en el resonador de grandes radios.

De los varios tipos de configuraciones descritos únicamente la confocal, hemisférica y de grandes radios son de interés en los láseres gaseosos. Se puede resumir su utilización más usual en la forma siguiente:

i) Se usa la configuración de grandes radios cuando se necesita una señal de salida de la más alta potencia posible. Esta configuración hace el máximo uso del medio activo del láser, acompañado de fácil alineación y libre de fluctuaciones de intensidad. La operación en el modo transversal fundamental está asegurada mediante la elección cuidadosa de la separación entre espejos y del diámetro del tubo láser, así como evitando toda suciedad y utilizando espejos y ventanas al ángulo de Brewster de la más alta calidad óptica.

ii) Se usa la configuración hemisférica cuando no es tan importante la potencia de la señal de salida pero resulta imprescindible la operación en el modo fundamental bajo condiciones adversas.

iii) Se usa configuración confocal cuando se necesita una ganancia elevada en un tipo de láser tal que el diámetro del tubo sea el más pequeño posible.

### 1.2.3. Sensibilidad al alineamiento de las diversas configuraciones

Como ya hemos indicado, se dice que los dos espejos que cierran a ambos lados la cavidad óptica están alineados cuando las rectas imaginarias normales al centro de cada espejo coinciden, formando el eje óptico del resonador. Una alineación correcta de los espejos es de suma importancia, especialmente en los láseres gaseosos en los que la longitud de la cavidad óptica excede normalmente de 1 m. Una mala alineación de los espejos incrementa las pérdidas de la cavidad ya que disminuye la estabilidad de la misma y se incrementan las pérdidas por difracción, pudiendo llegar a contrarrestar la ganancia del medio amplificador e impedir la oscilación láser.

Hay muy poca discusión en la literatura acerca de la sensibilidad de las diversas configuraciones de resonadores al alineamiento. Un estudio somero al respecto puede encontrarse en [28] y una discusión más detallada en [29] .

En el apartado anterior al discutir las características de las diversas configuraciones que pueden adoptarse para el resonador fuimos indicando la sensibilidad al alineado de cada una de ellas. Vimos que las configuraciones más tolerantes a una mala alineación son la confocal y la hemisférica, y las más estrictas la plano-paralela y la concéntrica, especialmente en el caso esférico. La configuración de largos radios, si bien menos estricta que la plano-paralela, es considerablemente más crítica que la confocal o la hemisférica. En general, la tolerancia de una cavidad al alineamiento es razonablemente grande siem-

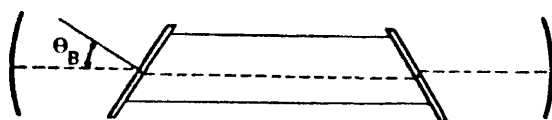


Figura 12.- Láser de gas mostrando como el tubo láser se cierra a ambos lados con ventanas al ángulo de Brewster.

pre que la cavidad no se encuentre próxima al borde de la región estable en el diagrama de estabilidad [29] .

#### 1.2.4. Ventanas al ángulo de Brewster. Extracción de energía del sistema.

El corazón de cualquier sistema láser es la cavidad óptica en la cual va a ocurrir la oscilación y amplificación de la emisión estimulada. En el centro de la cavidad óptica se sitúa el tubo láser conteniendo el medio amplificador (nos vamos a referir a láseres de gas) y cerrado a ambos lados por ventanas que forman un cierto ángulo en el eje óptico del resonador (figura 12). El ángulo escogido es el llamado ángulo de Brewster que tiene la propiedad de minimizar las pérdidas por reflexión: cuando la luz incidente sobre la superficie de separación entre dos medios lo hace con un ángulo igual al de Brewster la componente polarizada paralelamente al plano de incidencia es transmitida totalmente. Por el contrario, la componente polarizada perpendicularmente al plano de incidencia es transmitida sólo parcialmente, por lo que la luz que oscila en el resonador queda polarizada paralelamente

te al plano de incidencia a las ventanas. El ángulo de Brewster viene determinado por la condición [7-(c)]:

$$\theta_B = \arctg \left( \frac{n_2}{n_1} \right) \quad (1.82)$$

donde  $n_1$  es el índice de refracción del medio por el que se propaga el haz incidente y  $n_2$  el índice de refracción del medio por el que se propaga el haz transmitido. En nuestro caso el medio 2 es el material de la ventana y el medio 1 es aire, por lo que  $n_1 \simeq 1$ . Las ventanas se sitúan usualmente tal como se indica en la Figura 12 en vez de paralelas a fin de evitar el desplazamiento del haz.

De lo dicho hasta ahora se comprende fácilmente que es preciso ajustar la posición de las ventanas de modo que el plano de incidencia (plano formado por el haz incidente en la ventana y la normal a la misma en el punto de incidencia) sea el mismo para ambas ventanas. En efecto, si así no ocurriese resultaría que cada una de las dos ventanas polarizaría la luz que la atraviesa en un plano distinto, de modo que luz que es transmitida al cien por cien por una de las ventanas tendría pérdidas en la otra, y viceversa: cada ventana eliminaría de la cavidad resonante parte de la luz transmitida por la otra con el consiguiente incremento de las pérdidas en la cavidad. Si, por el contrario, ambas ventanas tienen el mismo plano de incidencia la luz transmitida al 100% por una ventana también lo es por la otra, y la presencia de las ventanas no contribuye a elevar excesivamente las pérdidas en la cavidad (si bien hemos hablado, por simplicidad del argumento, de transmitividad del 100%, esto no es totalmente correcto, por cuanto que hay que tener en cuenta la absorción de la luz por el material de que están

constituidas las ventanas). En el apartado 3.6.1. se describe un procedimiento experimental simple que permite obtener el ajuste deseado de las ventanas.

Para el caso de láseres de estado sólido, tales como el de Ruby o Nd-YAG, los extremos del cristal se pulen de modo que queden planos y paralelos entre sí y se recubren con material con el grado adecuado de reflexión, de modo que actúan como espejos. En este caso no son necesarios ángulos de Brewster y la salida será no polarizada. Alternativamente, puede ser necesario el uso de espejos curvos externos, de modo que el cristal del medio láser debe ser cortado al ángulo de Brewster.

Una vez que hemos conseguido la oscilación y amplificación de la emisión estimulada, tenemos que extraer la energía del resonador. Esto se puede conseguir de diversas maneras. En una de ellas uno de los espejos transmite ligeramente (se suele llamar espejo extractor). La transmisión óptima del espejo extractor depende de la ganancia del láser. Si la transmisión es demasiado pequeña se conseguirá muy poca o nula extracción de energía. Si la transmisión es demasiado alta el número de pasos (reflexiones) en la cavidad óptica puede resultar insuficiente para conseguir una ganancia que supere las pérdidas. Como regla informal se puede decir que transmisiones del 1 o 2% pueden ser buenas para una línea láser de baja ganancia, mientras que se pueden utilizar transmisiones del 10% o mayores si la ganancia es muy alta.

Un segundo procedimiento para la extracción de energía, muy utilizado en láseres de gas, consiste en recoger la porción reflejada

por las ventajas del material transparente que cierran el tubo láser. A estos efectos es conveniente situar una de las ventanas (la que se va a usar para extraer la energía) unos grados fuera del ángulo de Brewster, lo que incrementa muy poco las pérdidas de la cavidad y permite mejorar la extracción de la energía. Este segundo procedimiento fue el utilizado por nosotros, para lo cuál situamos una de las ventanas que cierran el tubo láser a un ángulo  $10^\circ$  menor que el de Brewster.



## II. LASER DE FOTODISOCIACION DE IODO

### 2.1. LASERES QUIMICOS

Ya hemos hablado brevemente en el capítulo 1 acerca de los llamados láseres químicos (apartado 1.1.9.3) a propósito de los diversos métodos utilizados para obtener inversión de población. Los láseres químicos [14] , [31] , [32] se definen como láseres donde la inversión de población se obtiene por canalización selectiva de la energía de una reacción química sobre ciertos estados excitados de los productos. Se incluyen en esta definición aquellos láseres que son bombeados por transferencia de energía desde especies químicamente excitadas a otras especies, mezcladas con las primeras, y que son entonces capaces de emitir radiación láser, así como los láseres que son bombeados por fotodisociación. Las reacciones que producen emisión láser consumen átomos libres o radicales, los cuáles se obtienen a partir de precursores adecuados por fotólisis de destello rápida, descargada eléctrica, inyección de un haz de electrones en un gas pre-mezclado o por disociación térmica de los reactantes antes de mezclarlos. Los láseres químicos "puros" son auto-sostenidos y obtienen la energía de excitación directamente a partir de una mezcla de compuestos estables que actúan espontáneamente sin aplicación de fuentes auxiliares de iniciación [33] - [35] .

Una molécula puede almacenar energía en grados de libertad electrónicos, vibracionales, rotacionales o traslacionales. No obstante, la probabilidad de que la energía se acumule en esos grados de libertad y aparezca en forma de emisión láser difiere considerablemente de un caso a otro. La figura 13 muestra la forma usual del perfil de reacción

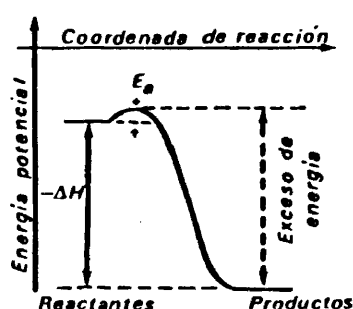


Figura 13.-

para una reacción exotérmica. Esta claro que una molécula producto que acaba de emerger del complejo activado se encuentra lejos de su estado de equilibrio. Dicha molécula contiene un exceso de energía que puede, en principio, perder de dos maneras: por procesos radiativos o por procesos colisionales, de modo que hay siempre competición entre estos tipos de procesos. La cuestión clave es si la reacción canaliza selectivamente parte de la energía en uno o más estados altos de los productos creando una inversión de población. Esto puede ocurrir cuando en el curso de la reacción alguna constricción dinámica impide una distribución puramente estadística de la energía.

La producción de ganancia láser no depende solamente de la inversión de población, sino también de la sección eficaz de emisión estimulada (apartado 1.1.4) que viene dada por la expresión (1.26)

$$\sigma(\nu) = \frac{\lambda^2}{8\pi\tau_g} g(\nu)$$

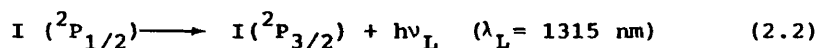
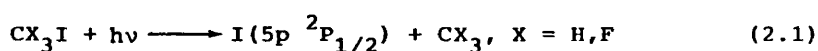
Ciñéndonos, por claridad del argumento, al centro de la línea de la transición y teniendo en cuenta que en estas condiciones y

de acuerdo con (1.31) y (1.34)  $g(\nu)$  es proporcional a  $1/\Delta\nu$ , siendo  $\Delta\nu$  la anchura a media altura de la línea de la transición, vemos que la probabilidad de que la emisión estimulada pueda dominar sobre la relajación colisional es directamente proporcional al cuadrado de la longitud de onda de la transición e inversamente proporcional a la vida media de emisión espontánea  $\tau_s$  del estado emisor y a la anchura a media altura de la transición. Estos factores parecen ser más favorables para aquellos láseres químicos basados en excitación electrónica que para los que se basan en excitación vibracional, puesto que si bien las transiciones electrónicas involucran menores longitudes de onda, también involucran, en la mayoría de los casos, vidas medias mucho más cortas que las correspondientes a las transiciones vibracionales (una excepción es la transición  $I(5^2P_{1/2}) \rightarrow I(5^2P_{3/2})$ ). Desafortunadamente, la excitación electrónica no es común en las reacciones químicas. La energía requerida para transiciones en la región visible del espectro se encuentra entre 1,79 eV (700 nm) y 3,09 eV (400 nm), de modo que la mayoría de las reacciones químicas no suministran energía suficiente para este tipo de excitación. La mayor parte de las reacciones químicas proceden vía estados vibracionalmente excitados, con energías de 0,04 a 0,4 eV por cuanto vibracional.

Si bien se conocen reacciones favorables (por ejemplo, algunas reacciones en las que intervienen moléculas poliatómicas o moléculas pequeñas que contienen átomos metálicos) y es de esperar el éxito en el bombeo químico de estados electrónicos, hasta el presente únicamente se ha conseguido emisión desde estados electrónicamente excitados en el grupo de los láseres de fotodisociación, en el que se incluye el láser de

iodo estudiado por nosotros. Estrictamente hablando, un láser de fotodisociación no es un láser químico, puesto que la reacción de descomposición es endotérmica y no hay energía química convertida en energía radiante. En este grupo de láseres la excitación selectiva se origina por excitación electrónica de una molécula seguida por un proceso de descomposición. La descomposición más simple es la ruptura del enlace químico. La excitación inicial se puede conseguir por medio de fotólisis de destello, si bien también es efectiva la excitación por impacto de electrones.

El primer láser de fotodisociación se obtuvo a partir de la fotólisis de destello del trifluoro iodo metano ( $\text{CF}_3\text{I}$ ) y del ioduro de metilo ( $\text{CH}_3\text{I}$ ) [1]. Los átomos de iodo se forman en el estado electrónicamente excitado  $^2\text{P}_{1/2}$ :



Kasper, Parker y Pimentel [2] investigaron nueve alquil ioduros y todos ellos excepto uno, el ioduro de isopropilo ( $\text{i-C}_3\text{H}_7\text{I}$ ) dieron la emisión  $\text{I}(^2\text{P}_{1/2}) \longrightarrow \text{I}(^2\text{P}_{3/2})$ . La emisión más intensa se obtuvo con el  $\text{CF}_3\text{I}$  y Donovan y Husain [36] mostraron el porqué. Recientemente se ha mostrado la posibilidad de láseres de fotodisociación de iodo a partir de la fotólisis de moléculas con enlaces entre átomos de iodo y elementos del grupo V [37], [38]. En la sección siguiente trataremos con más detalle el láser de fotodisociación de iodo.

El otro único halógeno con el que también se ha obtenido emisión láser en estas condiciones (si bien con mucha menos potencia que la que se obtiene con los sistemas que emplean iodo) es el bromo. Se ha obtenido emisión láser a partir de la transición  $\text{Br}(4p \ ^2P_{1/2}) \rightarrow \text{Br}(4p \ ^2P_{3/2})$  a  $\lambda_L = 2714 \text{ nm}$ . Los átomos de bromo excitado se obtienen por fotólisis de  $\text{IBr}$  [39] y de  $\text{CF}_3\text{Br}$  [40]. No se ha observado emisión láser correspondiente a las transiciones  $^2P_{1/2} \rightarrow ^2P_{3/2}$  del cloro ( $\lambda = 11351 \text{ nm}$ ) y del fluor ( $\lambda = 24752 \text{ nm}$ ). Se ha obtenido también emisión láser por fotodisociación de moléculas diatómicas de metales alcalinos. Se ha observado emisión correspondiente a las transiciones  $(np, \ ^2P_{3/2} \rightarrow ^2P_{1/2})$  para el rubidio ( $\lambda_L = 2254 \text{ nm}$ ) y para el cesio ( $\lambda_L = 3095 \text{ nm}$ ) [41].

Existen también láseres de fotodisociación que dependen de la excitación vibracional de los productos de disociación. Así, Pollack [42] mostró que la ruptura fotolítica del enlace en el cloruro de nitrilo ( $\text{ClNO}$ ) produce emisión en las transiciones vibracionales del  $\text{NO}$  desde  $v = 6 \rightarrow 5$  hasta  $v = 9 \rightarrow 8$ . De modo similar, la fotólisis de destello del cianógeno ( $\text{C}_2\text{N}_2$ ) produce  $\text{CN}$  vibracionalmente excitado con emisión láser en las transiciones  $v = 3 \rightarrow 4$  [43].

Los láseres químicos se usan ampliamente en estudios cinéticos y de transferencia de energía. También se han impuesto como micropruebas de tiempo real para observar fuera del resonador constantes de velocidad de estados específicos, así como para bombear moléculas preparadas a estados vibracionalmente excitados [14]. Otros estudios hacen uso de la capacidad de los láseres químicos de proporcionar señales de salida de alta potencia. A este respecto podemos señalar los experimen-

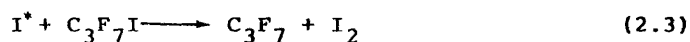
tos encaminados hacia la consecución de fusión nuclear controlada utilizando láseres de iodo o de  $\text{CO}_2$  [44] , [45] .

## 2.2. EL LASER DE IODO

En el año 1938 Porret y Goodeve [46] analizaron la absorción ultravioleta de los ioduros de alquilo y concluyeron que la fotólisis del  $\text{CH}_3\text{I}$  debería originar fundamentalmente átomos de iodo en el estado electrónicamente excitado  $^2\text{P}_{1/2}$ . En el año 1964 Kasper y Pimentel [1] observaron señales de emisión estimulada en la fotólisis de destello del  $\text{CF}_3\text{I}$  y del  $\text{CH}_3\text{I}$ , que ellos interpretaron como acción láser originada de acuerdo con el esquema (2.1) y (2.2) reseñado en el apartado anterior. El láser mostró una ganancia muy alta incluso en estos primeros experimentos, midiéndose una amplificación de 3,4 sobre una longitud activa de solamente 5 cm. En 1965 el estudio de este láser se extendió a otros varios ioduros de alquilo [2] . La emisión más intensa se encontró en los compuestos fluorados y no se obtuvo emisión láser en la fotólisis de  $\text{i-C}_3\text{H}_7\text{I}$ ,  $\text{HI}$  o  $\text{I}_2$ . El  $\text{i-C}_3\text{H}_7\text{I}$  y el  $\text{I}_2$  no solamente no producen emisión láser sino que actúan como desactivadores de los átomos de iodo excitados cuando se añaden a otras mezclas sometidas a fotólisis. En 1966 se investigó la dependencia con la presión de la salida láser y se hizo un primer intento de elaboración de un modelo que interpretase los datos experimentales [47] . También en 1966 Donovan y Husain [36] publicaron el primero de una serie de artículos estudiando, por espectroscopía cinética en el ultravioleta de vacío, la producción y decaimiento de  $\text{I}(^2\text{P}_{1/2})$  en la fotólisis del  $\text{CF}_3\text{I}$  (una revisión se presenta en [48]) . Este trabajo proporcionó gran parte de las constantes de velocidad de

desactivación colisional. En el mismo año DeMaria y Ultee [49] mostraron que con este láser se podía llegar a energías de salida tan altas como 65 J.

A partir del año 1966 comenzaron a aparecer una serie de artículos rusos sobre este láser [50]. Basov et al [51] encontraron que la cantidad final de  $I_2$  formada en la fotólisis del  $C_3F_7I$  cuando se quitaban los espejos de la cavidad láser era 2,4 veces mayor que la medida cuando la cavidad se cerraba a ambos lados con espejos reflectantes al 100%. Concluyeron que la formación de  $I_2$  estaba relacionada con reacciones de átomos de iodo excitados y sugirieron como posible explicación la reacción:



donde  $I^*$  representa el estado excitado del iodo  $^2P_{1/2}$ .

La descomposición pirolítica del  $CF_3I$  durante la fotólisis de destello fue examinada por Zalesskii y Moskalev [52] por medio de espectroscopía de absorción. La pirólisis del  $CF_3I$  parece ser la razón del repentino incremento en su velocidad de descomposición en algún punto durante la fotólisis. Este incremento, sin embargo, desaparece si se añade una gran cantidad de argon o si se utiliza un ioduro con elevado calor específico, tal como el  $C_3F_7I$ . Una vez evitado el excesivo calentamiento la principal razón para la terminación del pulso láser es la desactivación colisional de los átomos de iodo excitados, principalmente por  $I_2$ . Se hizo enseguida evidente, conforme se fueron realizando más estudios experimentales acerca de este láser, que el mecanismo de reacción es más complicado que lo que sugieren las reacciones (2.1) y

(2.2). Medidas de ganancia de pequeña señal realizadas durante y después de la fotólisis [53] mostraron que la máxima amplificación se alcanza algún tiempo después de que ha terminado la entrada de luz procedente del bombeo. Este efecto no se puede describir como resultante únicamente de la reacción fotolítica (2.1). Se han propuesto dos explicaciones que incluyen bombeo químico adicional [54] y difusión del yodo excitado [55]. Además, bajo ciertas condiciones, la disociación de algunos yoduros parece ser grandemente reversible [56]. Estas observaciones indican que nuestro conocimiento acerca de los procesos cinéticos de este láser es todavía bastante incompleto. Estudios de modelado cinético han sido publicados por Hohla y Kompa [54], O'Brien y Bowen [57], [58], Zaleskii [59], [60], Andreeva et al [61], Haaland y Meyer [62], Palmer y Padrick [63] y Vinokurov y Zaleskii [64], entre otros. Ninguno de estos estudios, sin embargo, pudo dar cuenta de todos los hechos observados ya mencionados. No obstante, y a pesar de estas insuficiencias, se encontraron condiciones bajo las cuales es posible operación láser eficiente.

El interés en el desarrollo técnico de este láser apareció algo más tarde. Los primeros experimentos de conmutación de Q (Q-switching) y de fijación de amplitudes y fases de los modos (mode-locking) fueron hechos por Ferrar [65]. El desdoblamiento y corrimiento de las líneas láser por efecto Zeeman fue investigado por varios autores con el objeto de incrementar la energía almacenable en un láser de yodo amplificador [66], [67]. Se cree ahora, sin embargo, que el necesario ensanchamiento de la línea se consigue más fácil y simplemente mediante la adición de un gas inerte. En diversos estudios se determinó la probabilidad total de la transición y se analizó el desdoblamiento hiperfino de la misma



[68], [69]. En el año 1970 Hohla, Gensel y Kompa comenzaron en el Max Planck Institute for Plasma Physics en Garching un estudio sistemático acerca de las posibilidades de la obtención de pulsos de alta potencia con este láser. Este trabajo condujo a aumentar la salida del láser hasta el rango de 300 J con duraciones del pulso entre 1 y 3 ns [70]. Algo más tarde comenzaron estudios similares en Rusia [71]. El interés creciente en este láser ha sido motivado principalmente por la necesidad de altas potencias láser para experimentos encaminados hacia el control de la fusión nuclear.

#### 2.2.1. Sustancias de trabajo para el láser de iodo

Como ya se ha indicado, el láser de fotodisociación de iodo opera sobre la transición dipolar magnética del iodo atómico  $5p\ ^2P_{1/2} \longrightarrow 5p\ ^2P_{3/2}$ , oscilando a  $1,315\ \mu\text{m}$ . La inversión de población sobre dicha transición con subsiguiente emisión láser se obtiene por fotólisis de destello de diversos alquilos y perfluoro alquil ioduros [2], tales como  $\text{CH}_3\text{I}$ ,  $\text{CF}_3\text{I}$ ,  $\text{C}_3\text{F}_7\text{I}$ ,  $\text{C}_2\text{F}_5\text{I}$  y otros, que producen por fotodisociación iodo atómico excitado  $\text{I}(5^2P_{1/2})$  con un rendimiento superior al 90%. La determinación del rendimiento de producción de átomos de iodo excitados por fotólisis ultravioleta de las sustancias de trabajo arriba citadas proporciona los siguientes valores [72], [73]: para el  $\text{CH}_3\text{I}$ ,  $(92 \pm 2)\%$ ; para el  $\text{CF}_3\text{I}$ ,  $(91 \pm 3)\%$ ; para el  $i\text{-C}_3\text{F}_7\text{I}$ ,  $(90 \pm 2)\%$ ; para el  $n\text{-C}_3\text{F}_7\text{I}$ ,  $>99\%$ ; y para el  $\text{C}_2\text{F}_5\text{I}$ ,  $>98\%$ . La emisión más intensa se encuentra siempre en los compuestos fluorados.

Las bandas de fotodisociación de estas sustancias están localizadas en el ultravioleta y muestran ligeras diferencias en estructura de

una sustancia a otra. El  $\text{CH}_3\text{I}$  presenta una banda de absorción centrada en 254 nm (anchura a media altura 30 nm; sección eficaz de absorción,  $4,5 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ ) y gran cantidad de bandas estrechas e intensas en torno y por debajo de 200 nm [74] - [76]. El  $\text{CF}_3\text{I}$  presenta una banda centrada en 268 nm (anchura a media altura, 40 nm; sección eficaz de absorción,  $6,9 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ ) y un conjunto de bandas estrechas en torno y por debajo de 175 nm [77], [78]. El resto de las sustancias de trabajo utilizadas presentan espectros similares [56], con una banda de absorción de  $\approx 40$  nm de anchura a media altura centrada en el intervalo 250-300 nm y otras bandas de absorción de onda corta acerca de las cuáles hay muy pocos datos disponibles. Lo que resulta un tanto sorprendente es la nula atención que han recibido las bandas de absorción de onda corta con respecto a la operación láser.

#### 2.2.2. Espectroscopía de la transición láser

La fotólisis produce átomos de iodo en el más bajo de los estados electrónicos excitados, el  $5^2\text{P}_{1/2}$ . La transición al estado fundamental  $5^2\text{P}_{3/2}$  es una transición dipolar magnética. La vida media radiativa del estado excitado ha sido medida recientemente por Comes y Pionteck [79] [80], que obtuvieron un valor para la misma de  $108 \pm 10$  ms, algo inferior a los  $170 \pm 40$  ms de Derwent y Thrust [81] y los  $185 \pm 50$  ms de Zuev et al [69], pero que se compara mejor con los valores teóricos de 130 ms de Zuev et al [69] y de 110 ms de O'Brien y Bowen [57].

##### 2.2.2.1. Estructura hiperfina de la transición

Un análisis espectroscópico detallado muestra desdoblamiento hi

perfino de ambos niveles  $^2P_{1/2}$  y  $^2P_{3/2}$ . El spin nuclear  $5/2$  del  $I^{127}$  se acopla al momento angular total de los electrones  $5p^5$  para dar dos niveles hiperfinos del estado superior  $^2P_{1/2}$  ( $F=2,3$ ) y cuatro niveles hiperfinos del estado inferior  $^3P_{3/2}$  ( $F = 1, 2, 3, 4$ ), tal como se indica en la figura 14. Estos niveles hiperfinos están a su vez degenerados porque el spin con su valor de  $5/2$  se puede orientar de  $(2 \times 5/2 + 1) = 6$  maneras diferentes con respecto a la dirección de un campo magnético externo. Esto significa que la degeneración total  $g$  del estado  $^2P_{1/2}$  es 12, siendo la degeneración del nivel  $F = 2$  igual a 5 y la del nivel  $F = 3$  igual a 7. Estos valores se han señalado en la parte derecha de los niveles de la figura 14. Estos factores  $g$  tienen una gran importancia porque determinan la relación de la inversión de población entre los dos niveles superiores:  $5/12$  de los átomos de iodo excitados se producen en el nivel  $F=2$  y  $7/12$  en el nivel  $F=3$ .

Las posibles transiciones entre los diversos niveles hiperfinos se indican en la figura 14. Estas transiciones vienen determinadas por la regla de selección  $\Delta F=0, \pm 1$ . Se pueden distinguir dos grupos, que se han dibujado con sus intensidades relativas en la parte inferior de la figura 14: un grupo a longitudes de onda más cortas comenzando en el nivel  $F=3$  y un grupo a más largas longitudes de onda comenzando en el nivel  $F=2$ . Cada uno de estos grupos consiste en tres líneas cuyas distancias se han indicado en la figura 14. Determinaciones de la separación entre los niveles hiperfinos fueron hechas por Jaccarino et al [83] (para los niveles del estado fundamental  $^2P_{3/2}$ ), Onaka [84] (para los niveles del estado excitado  $^2P_{1/2}$ ), Verges [85], Belousova et al [86], y, recientemente, Mukhtar et al [87]. De estos, los valores más seguros son los correspondientes a las referencias [69] y [87] que, por otra parte, están en buen acuerdo

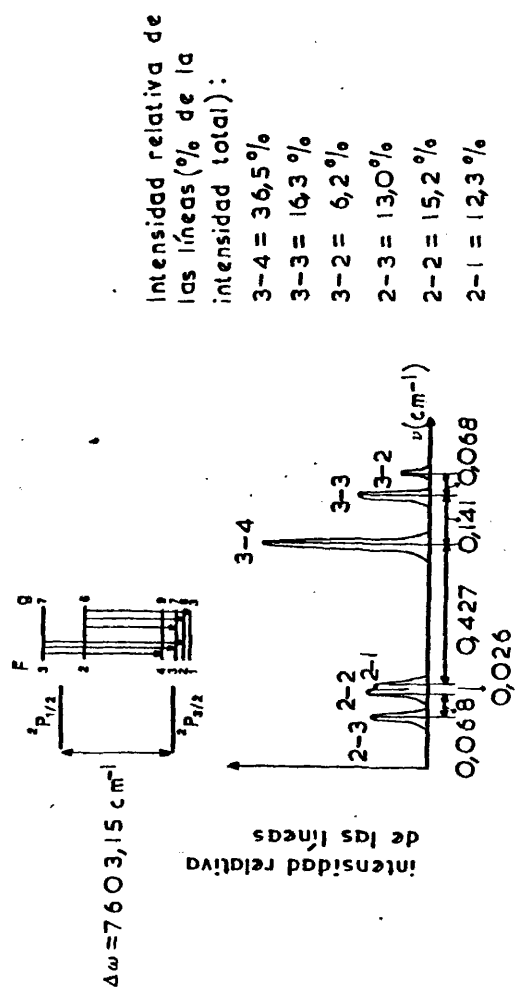


Figura 14.- Desdoblamiento hiperfino de la transición del láser de yodo [69] .

do entre sí.

#### 2.2.2.2. Probabilidades de transición, anchuras de línea y sección eficaz de las transiciones

Valores para el coeficiente de emisión espontánea  $A$  de Einstein para las diversas transiciones hiperfinas fueron calculados en la referencia [69], con el resultado:

Transición $F_i \longrightarrow F_j$	3-4	3-3	3-2	2-3	2-2	2-1	$\Sigma$
Probabilidad de emisión espontánea $A_i \longrightarrow j$	5,0	2,1	0,6	2,4	3,0	2,3	7,7

donde  $\Sigma$  se refiere al coeficiente total  $A$  de la transición  $^2P_{1/2} \longrightarrow ^2P_{3/2}$ . Determinaciones experimentales llevadas a cabo por los mismos autores proporcionan los valores  $A = (5,4 \pm 2,0) s^{-1}$  y  $A_{3 \rightarrow 4} = (3,4 \pm 1,1) s^{-1}$ , si bien en un trabajo reciente [82] se muestra que dichos valores deben ser corregidos, de modo que  $A = (8,1 \pm 3,0) s^{-1}$  y  $A_{3 \rightarrow 4} = (5,1 \pm 1,6) s^{-1}$ , en muy buen acuerdo con el valor teórico predicho. En la referencia [88] se presentan valores experimentales recientes del coeficiente  $A$  en función de la presión de diversos gases diluyentes.

El reciente desarrollo de los sistemas láser de iodo de alta potencia ha dado ímpetu a las medidas de la sección eficaz de emisión estimulada de la transición  $^2P_{1/2} \longrightarrow ^2P_{3/2}$  del iodo atómico en función de la presión tanto de los diversos yoduros empleados como sustrato como de los

diversos gases empleados como diluyentes (He, CO<sub>2</sub>, Ar, SF<sub>6</sub>, Ne, etc.) [69] , [89] , [90] - [96] , [87] , [82] . De las ecuaciones (1.26), (1.31) y (1.34) se comprueba inmediatamente que el valor máximo de  $\sigma$ , que llamaremos  $\sigma_0$ , es inversamente proporcional a la anchura de la línea  $\Delta\nu$ . Por otro lado,  $\Delta\nu$  es proporcional a la presión  $p$  del gas (o mezcla de gases) en un amplio rango de presiones [69] , [91] - [94] , [96] , [97] , [87] , de modo que:

$$\sigma_0 \sim \frac{1}{p} \quad (2.4)$$

y la adición de diversos gases a la sustancia de trabajo permite reducir el valor de  $\sigma_0$  y aumentar la capacidad de almacenamiento de energía del sistema. Obviamente, sólo son candidatos para este propósito aquellos gases que no desactiven apreciablemente los átomos de iodo excitados durante el tiempo de bombeo.

La relación (2.4) se ve modificada, por superposición de las líneas hiperfinas, a presiones para las que ocurre un solapamiento parcial de dichas líneas [95] , [98] , de modo que en la zona  $\Delta\nu = 3-30$  GHz la sección eficaz se reduce con la presión más lentamente de lo que indica la expresión (2.4). A altas presiones las seis transiciones hiperfinas solapan en una sola línea y vuelve a cumplirse la relación (2.4). En la zona de ensanchamiento intermedio la emisión se puede considerar como consistente en dos líneas homogéneas resultantes de dos niveles superiores independientes con degeneraciones 5 y 7 y un solo nivel inferior de peso estadístico 24 [95-a] . Coeficientes del ensanchamiento de la transición con la presión para distintos sustratos y gases diluyentes han sido determinados por diversos autores [69] , [93], [99] , [95] , [98] , [97] , [87] [82] .

Es necesario tener también en cuenta que a bajas presiones de trabajo la parte Doppler de la anchura de la línea se convierte en dominante. Así, de acuerdo con [69], la anchura total de la línea de luminiscencia del iodo atómico a 7,6 Torr de presión de  $n\text{-C}_3\text{F}_7\text{I}$  es igual a  $(419 \pm 75)$  MHz, de la cuál la parte Doppler es  $(330 \pm 60)$  MHz y la parte colisional  $(135 \pm 30)$  MHz. En cambio, cuando se mezcló el  $\text{C}_3\text{F}_7\text{I}$  con Ar (1 parte de  $\text{C}_3\text{F}_7\text{I}$  y 18 partes de Ar) con una presión total de 304 Torr, la anchura de la línea de luminiscencia  $((1,8 \pm 0,36)\text{GHz})$  fue debida fundamentalmente al ensanchamiento colisional.

#### 2.2.2.3. Láser de iodo en un campo magnético

Hemos visto en el apartado 2.2.2.1 que la interacción de los momentos nucleares del átomo de  $\text{I}^{127}$  (momento dipolar magnético, cuadrupolar eléctrico y octopolar magnético) con el campo magnético y gradiente de campo eléctrico de la capa electrónica origina el desdoblamiento hiperfino de los niveles de energía  $^2\text{P}_{1/2}$  y  $^2\text{P}_{3/2}$  en 2 y 4 subniveles, respectivamente. Cuando se impone un campo magnético externo la estructura hiperfina de los niveles de energía se desdobla, a su vez, en componentes Zeeman: el nivel superior  $^2\text{P}_{1/2}$  se desdobla en 12 y el inferior  $^2\text{P}_{3/2}$  en 24 subniveles. Están permitidas todas las transiciones entre subniveles que vengan acompañadas por un cambio del número cuántico magnético  $m$  en  $m = 0, \pm 1$ . Un estudio teórico muy completo de este desdoblamiento Zeeman en el  $\text{I}^{127}$ , proporcionando los niveles de energía y frecuencias de transición entre subniveles para intensidades del campo magnético externo de 0 a 30 kG, así como las correspondientes probabilidades de transición entre las componentes individuales para intensidades del campo entre 0 y 7 kG

se encuentra en la referencia [100] . En [101] se calculan las probabilidades de transición para campos entre 10 y 30 kG.

Es, pues, posible incrementar la anchura efectiva de la línea del láser de iodo y, por tanto, reducir el valor de la sección eficaz de emisión estimulada por medio del desdoblamiento Zeeman de la estructura hiperfina [68] , [102] , [67] . El corrimiento de las líneas es proporcional a la intensidad del campo magnético externo, siendo la constante de proporcionalidad distinta para cada componente hiperfina [103] , [104] , [101] , [105] . Si el campo magnético es aplicado de modo que varíe en su fuerza a lo largo de la dirección de propagación del láser (usualmente el eje del tubo láser), las líneas serán desplazadas en diferentes cantidades para posiciones diferentes a lo largo del tubo láser [106] . Para los fotones viajando a lo largo del eje del tubo láser el medio "aparecerá" como teniendo una anchura de línea efectiva muy incrementada consistente en las transiciones hiperfinas, diversamente corridas, que solapan entre sí.

La presencia de un campo magnético afecta grandemente a los coeficientes de ganancia de las diversas líneas hiperfinas de la transición [68] , [86] , [104] , [106] , [107] , [101] , [105] . Así, el coeficiente de ganancia de la transición  $F' = 3 \longrightarrow F = 4$ , que es la más intensa en campo cero, se hace menor que el de las transiciones  $F' = 2 \longrightarrow F = 2$  y  $F' = 2 \longrightarrow F = 3$  en campos magnéticos por encima de 500 G (hay también una dependencia con la presión, de modo que un incremento en la presión del gas de trabajo da lugar a un incremento de la intensidad del campo a la cuál el espectro contiene ambas componentes  $F' = 3 \longrightarrow F = 4$  y  $F' = 2 \longrightarrow$



$F=2$  [105] , [104]). Se pueden utilizar entonces ventajosamente campos magnéticos inhomogéneos para controlar y modular la ganancia, potencia, duración y forma de la señal de salida del láser [67] , [106] , [108] , [101] , [109] , [110] .

Conviene tener bien presente, finalmente, que las intensas corrientes de las lámparas de destello originan fuertes campos magnéticos en el medio láser a no ser que se utilice una geometría adecuada.

#### 2.2.2.4. La velocidad de relajación entre subniveles de la estructura hiperfina

Si se desea producir o amplificar pulsos cortos es necesario tener en cuenta los tiempos de relajación entre los dos subniveles del estado superior  $^2P_{1/2}$  y entre los cuatro subniveles del estado inferior  $^2P_{3/2}$ . Esta materia ha sido investigada teóricamente por Yukov [111] , teórica y experimentalmente por Alekseev et al [112] y experimentalmente (para el nivel superior) por Katulin et al [82] . Estas investigaciones muestran que los mecanismos de relajación entre los subniveles del estado superior y entre los subniveles del estado inferior son significativamente diferentes. Unicamente las partículas con momento electrónico angular pueden relajar de manera efectiva los niveles hiperfinos del estado superior, mientras que la relajación de los niveles hiperfinos del estado inferior es debida a colisiones de Van der Waals. La relajación entre los niveles del estado superior es causada fundamentalmente por transferencia resonante de excitación desde el átomo de iodo excitado a átomos de iodo en el estado fundamental y a radicales como  $CF_3$  o  $C_3F_7$ , con una velocidad estimada de  $1,5 \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$ , y por interacción de cambio entre dos áto-

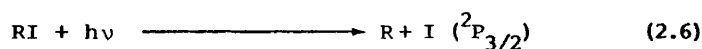
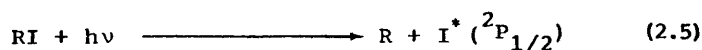
mos de iodo excitados, con una velocidad estimada de  $1,7 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$ . Los niveles inferiores, por el contrario, se relajan por colisiones con todas las partículas del medio, y la velocidad de la mezcla se ha estimado ser del orden de  $2,7 \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$ . Las concentraciones de átomos de iodo y de radicales bajo condiciones normales en un amplificador son del orden de  $10^{17} \text{ cm}^{-3}$  y, por tanto, el tiempo de relajación de los niveles del estado superior es del orden de  $10^{-8}$ - $10^{-7}$  segundos. Así, para una densidad de partículas excitadas de  $1,4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  Katulin et al [82] encontraron experimentalmente que el tiempo de relajación del nivel superior es de  $19 \pm 5 \text{ ns}$ . Esto implica que para pulsos láser en el régimen de nanosegundos los niveles de estructura hiperfina del estado superior del átomo de iodo no se relajan. Esta es la razón por la que el pulso de salida de un oscilador que se va a utilizar como entrada en un canal amplificador de pulsos cortos de alta potencia debe contener frecuencias de ambos grupos de líneas hiperfinas a fin de saturar toda la línea espectral del medio amplificador. Según indicamos en el apartado anterior, el modo más sencillo de asegurar esto puede ser el desdoblamiento Zeeman del medio oscilador. En cuanto a la mezcla de los niveles del estado inferior se puede obtener fácilmente sin más que añadir un gas diluyente: a una presión de 1 atmósfera la relajación de los niveles del estado inferior se realiza en menos de  $10^{-9}$  segundos.

### 2.2.3. Procesos cinéticos en el láser de iodo

En una primera aproximación se podrían considerar los procesos primarios y secundarios de este láser tal como se esquematiza en la figura 15. Sobre la base de este esquema sería de esperar que la concentra

ción inicial de  $I^*$  (representaremos con un asterisco las especies excitadas) fuese determinada por la entrada de luz de fotólisis y controlada a tiempos posteriores por la desactivación colisional. El papel competitivo de la emisión estimulada y la desactivación colisional es claro, especialmente en sistemas amplificadores donde es necesario almacenar la energía durante algún tiempo antes de que la señal procedente del oscilador pase a través del medio de ganancia. No obstante, el esquema simple de la figura 15 no es capaz de explicar muchos de los detalles finos de la operación láser. Mantendremos, pues, brevemente una discusión más específica al respecto.

Al comienzo de esta sección ya hemos considerado el proceso de fotólisis primaria, que transcurre de acuerdo con el esquema:



(en lo que sigue  $R$  representa un radical como  $CH_3$ ,  $CF_3$ ,  $C_2F_5$ ,  $C_3F_7$ ,  $C_4F_9$ ) y hemos hablado asimismo (en 2.2.1) acerca de los rendimientos de formación de  $I^*$  por parte de los diversos compuestos. Los radicales producidos a través del proceso de fotodisociación (2.5) y (2.6) están, con bastante seguridad, traslacional y vibracionalmente "calientes" lo que ha sido demostrado en la fotólisis de  $CH_3I$ ,  $C_2H_5I$ ,  $n-C_3H_7I$  y  $i-C_3H_7I$  [113] - [115]

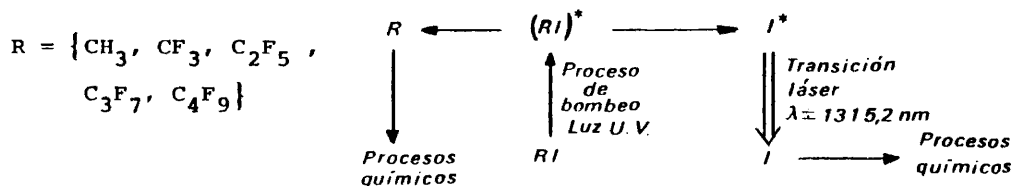
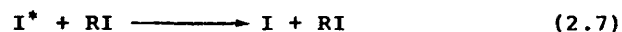


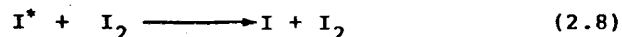
Figura 15

La reacción de desactivación:

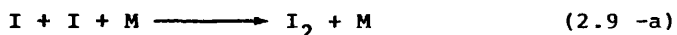


influencia fuertemente la eficiencia del ioduro como material láser.

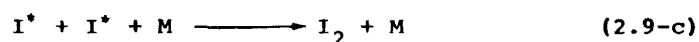
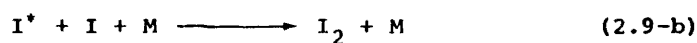
La reacción:



es la reacción de desactivación con mayor constante de velocidad. Su importancia se incrementa con el tiempo puesto que las moléculas de iodo se acumulan a partir de la recombinación de átomos de iodo en el estado fundamental en presencia de un tercer cuerpo M:

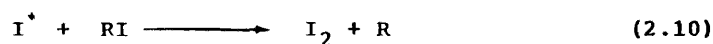


Las moléculas de iodo también se acumulan por pirólisis o descomposición térmica de las moléculas de ioduro de alquilo que se usa como sustrato debido a un excesivo depósito de calor en el medio láser por parte del destello. La formación de las moléculas de  $I_2$  conduce asimismo a la irreversibilidad del proceso de fotodisociación. Por encima de una temperatura crítica, que depende de la composición exacta del medio láser, la pirólisis se incrementa rápidamente, acelerándose la acumulación de iodo molecular, lo que conduce a una rápida extinción de la oscilación láser [116]. En ausencia de pirólisis (que se puede minimizar añadiendo un gas diluyente tal como Ar o  $SF_6$  [117]) la velocidad de acumulación de moléculas de iodo debida a la reacción (2.9-a) es un proceso lento pero acelerado. El tercer cuerpo más eficiente para promover (2.9-a) es la misma molécula de  $I_2$ . La reacción (2.9-a) puede, en principio, tener lugar con uno o los dos átomos de iodo excitados:



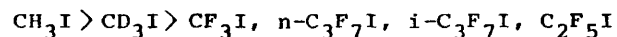
Consideraciones energéticas muestran que estas reacciones de recombinación deben tener constantes de velocidad menores que la reacción (2.9-a) puesto que cualquier complejo intermedio MI formado durante el proceso de recombinación debe ser menos estable cuando interviene un átomo de iodo excitado. Andreeva et al [61] estiman que las constantes de velocidad de (2.9.b) y (2.9-c) son al menos veinticinco veces menores que la constante de velocidad correspondiente a (2.9-a).

Constantes de velocidad para la desactivación por diversas especies de los átomos de yodo excitados en reacciones como (2.7) y (2.8) se pueden encontrar en [36] , [118] - [126] , [48] , [127] - [131] , [63] , [72] , [79] , [132] - [134] . Las constantes de velocidad para la desactivación por moléculas de yoduro de alquilo incluyen una contribución de la reacción de desactivación química:



No obstante, la contribución de esta reacción a la desactivación total es probablemente mucho menor que la de la reacción (2.7) [126] , [103] , [135] .

El orden de eficiencia en la desactivación del yodo excitado por parte de las moléculas de los diversos yoduros de alquilo usados como sustratos es:



Los perfluoro alquil ioduros, en particular, son desactivadores muy ineficientes de los átomos de iodo excitados. El iodo molecular es un desactivador muy eficiente y la reacción (2.8) eliminará rápidamente la oscilación láser si el iodo molecular crece lo suficiente durante la fotólisis [136] , [137] , [116] , [138] , [132] . Este crecimiento del iodo molecular es muy rápido si existe pirólisis como ya hemos indicado anteriormente.

También se produce desactivación del iodo excitado por radicales libres, siendo difícil separar las contribuciones de las reacciones:

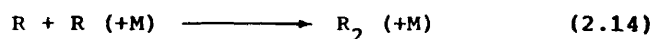


Existe reversibilidad del proceso de fotodisociación como resultado de la reacción (2.11) y de:



La presencia de un tercer cuerpo es necesaria para estabilizar la molécula, altamente excitada vibracionalmente, producida por la recombinación del radical y del átomo de iodo [103] . Constantes de velocidad para las reacciones (2.11) y (2.13) se han determinado en [139] , [54] , [61] , [127] , [140] , [63] , [72] , [73] , [141] . En un láser en el que sean disociadas una fracción sustancial de las moléculas del ioduro de alquilo usado como sustrato, las reacciones (2.11) y (2.12) serán probablemente las que tengan una contribución dominante a la hora de eliminar los átomos de iodo excitados. No obstante, dado que estas reacciones también eliminan átomos de iodo en el estado fundamental a una velocidad incluso mayor, no destruyen la inversión de población.

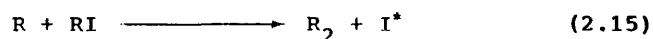
La reacción exotérmica de recombinación de radicales:



también causa irreversibilidad del proceso de fotodisociación y tiene una constante de velocidad grande, creciendo su importancia en el orden [127] [54] , [61] , [142] :



Otra reacción que varios autores han considerado como de posible importancia [61] , [49] , [143] , [129] , [67] , [54] , [53] , [59] es la reacción de bombeo químico:



Esta reacción se ha sugerido como una posible explicación de la "ganancia a tiempos tardíos" aparentemente observada en algún experimento láser [54] , [53] , si bien la existencia de esta "ganancia a tiempos tardíos" no se ha visto confirmada en experimentos posteriores [90] , [144] . Gusinow et al [55] han sugerido que una producción inicial no uniforme de  $I^*$  fuera del eje seguida de difusión podría dar cuenta del aparente incremento a tiempos tardíos de la ganancia axial. Esto es, sin duda, correcto en un modelo simple que ignore el resto de las complejidades del sistema tales como, por ejemplo, las ondas de choque que viajan radialmente. No obstante, un máximo en la producción de  $I^*$  fuera del eje en las condiciones experimentales señaladas en [54] , [53] es extremadamente improbable. En cualquier caso, es dudoso si la reacción (2.15) tiene algún significado real en la cinética del láser de fotodisociación de iodo [94] .

Las reacciones que hemos considerado hasta ahora no agotan todas las posibles reacciones en el medio de yoduro de alquilo fotolizado. En algunas discusiones acerca de la cinética de tales sistemas se han considerado muchas más reacciones, en número de varias decenas [59] , [54] , [60] , pero a fin de llegar a un modelo cinético manejable se ha concluido que solamente unas pocas de las mismas (algunas de las discutidas arriba) son importantes. En la literatura han aparecido varias otras discusiones de modelos cinéticos adecuados para el láser de fotodisociación de yodo [47] , [136] , [57] , [58] , [129] , [61] , [137] , [53] , [127] , [62] , [94] , [145], [146], [147] , [63] , [64] , si bien algunos de estos modelos [148] , [136] , [57] , [58] , [137] consideran demasiadas pocas reacciones y presentan una imagen en exceso simplificada de los procesos cinéticos. En muchos casos puede ser generado artificialmente un buen acuerdo aparente entre las predicciones del modelo y las observaciones experimentales a base de utilizar las constantes de velocidad de las reacciones consideradas como parámetros ajustables.

La mayoría de los modelos cinéticos que se han propuesto, incluso los más simplificados, predicen generalmente algunos de los hechos cualitativamente más importantes del comportamiento del láser, como por ejemplo: la subida inicial de inversión de población tras el comienzo de la excitación del bombeo; el subsecuente decaimiento de la inversión de población originada por los procesos de desactivación; la reversibilidad parcial de los procesos de fotodisociación, regenerando el yoduro; el crecimiento del yodo molecular, y la existencia de un óptimo de presión para obtener un máximo de energía de salida del láser. Para que sea útil un modelo cinético debería hacer al menos predicciones semicuantitativas acer



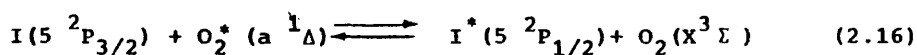
ca del comportamiento del láser, y algunos modelos han tenido algún éxito al respecto, por ejemplo en predecir la escala de tiempo de almacenaje de energía en el sistema antes de que la desactivación de los átomos de yodo destruya la inversión de población [136], [129], [59], [54], [53], [127], [91], [60] y salida de energía del láser [59], y debería ser capaz de predecir el grado fraccional de fotólisis que se obtiene para una energía de entrada procedente de una lámpara de destello dada, así como la cantidad de fotólisis irreversible que se obtiene para unas condiciones de excitación dadas.

A la luz de los datos cinéticos de que se dispone parece que es posible hacer predicciones semicuantitativas acerca del comportamiento del láser a partir de la consideración de las reacciones más importantes que ocurren en el sistema, que son las (2.5)-(2.9) y (2.11)-(2.14). No se pueden obtener, posiblemente, predicciones más seguras sin considerar otras complejidades del sistema como, por ejemplo, calentamiento del gas, que cambia las constantes de velocidad de las reacciones y conduce en ultimo extremo a la pirólisis [136], [52], [116], [60], [132], [133]; transporte del gas (ondas de choque) [149], [150], [151], [152]; la distribución espectral del destello de excitación y su interacción con el yoduro y los productos de fotólisis [153], y los efectos del campo magnético creado por la lámpara de destello.

#### 2.2.4. La fuente de bombeo

El método más usual de bombeo del láser de fotodisociación de yodo es el de fotólisis de destello utilizando lámparas pulsadas de xe-

non. No obstante, existen otros métodos alternativos de bombeo. De estos, quizá el de uso más extenso es el que consiste en descargas de alta intensidad en la mezcla de trabajo [71], [152], [154] - [157], utilizado por los investigadores del Instituto de Física Lebedev de Moscú. También han sido utilizadas descargas eléctricas transversales [158] - [160] así como la radiación de alta intensidad producida por un plasma [161]. Recientemente se ha construido un láser de iodo atómico donde el estado excitado  $^2P_{1/2}$  es bombeado por transferencia de energía desde el  $O_2(^1\Delta)$  produciendo químicamente [162], [163], de acuerdo con la reacción de bombeo:



que ya Derwent y Thrust [81] habían sugerido en 1971 como fuente de bombeo para un láser de iodo. Si se establece el equilibrio con una relación de concentraciones  $O_2(^1\Delta)/O_2(^3\Sigma)$  mayor que 0,17 se puede conseguir inversión de población entre los estados  $^2P_{1/2}$  y  $^2P_{3/2}$  del iodo atómico. Los átomos de iodo se obtienen por disociación de  $I_2$ .

También recientemente Davis [164] ha demostrado la posibilidad de emisión láser sobre la transición  $^2P_{1/2} \longrightarrow ^2P_{3/2}$  del iodo atómico bombeando vapor de  $I_2$  a disociación por medio de un láser de colorantes bombeado a su vez por lámpara de destello. La fotólisis del iodo molecular por medio de bombeo selectivo ya había sido usada por Gavrilina et al en 1972 [153] como bombeo adicional en un láser ordinario de fotodisociación bombeado con una lámpara de destello.

Por último, un láser de iodo atómico de flujo continuo bombea-

do con una lámpara de mercurio de alta presión ha sido descrito por Andreeva et al [165] y un láser de recombinación de iodo, también de flujo continuo, utilizando metales alcalinos para obtener inversión de población, ha sido recientemente sugerido por Ageev et al [166] .

#### 2.2.5. Características del láser de iodo

##### 2.2.5.1. Pulso de salida en el láser de iodo. Dependencia con la presión

Diversos autores han investigado la dependencia de la energía de salida del pulso láser con la presión de la sustancia de trabajo [50] , [47] , [58] , [91] , [148] , [103] . Se encuentra que la energía de salida tiene un máximo en un cierto rango de presiones que varía de un ioduro a otro. Para una energía de descarga de 800 J los valores de la presión de la sustancia de trabajo en el tubo láser para los que la energía de salida es máxima son [47] :  $\text{CH}_3\text{I}$ , 24 Torr;  $\text{CF}_3\text{I}$ , 116 Torr;  $\text{C}_2\text{F}_5\text{I}$ , 88 Torr;  $n\text{-C}_3\text{F}_7\text{I}$ , 128 Torr. Existe asimismo un umbral para la presión de la sustancia de trabajo en el tubo láser por debajo del cual no se obtiene emisión láser. Este valor umbral de la presión se sitúa en torno a 0,5 Torr para todos los ioduros [47] , [1] , [58] . Para una presión determinada existe un valor mínimo de la energía de descarga (energía de entrada) por debajo del cual tampoco se obtiene emisión láser [50] , [91] , [87] . Por ejemplo, para 27 Torr de  $\text{CF}_3\text{I}$  la energía de bombeo umbral es de 220 J [50] . Para el  $\text{CF}_3\text{I}$  el valor de este umbral es mínimo en el rango de presiones de 10-20 Torr y vale  $\approx 80$  J. Para el caso del  $\text{CH}_3\text{I}$  el rango de presiones para las que dicho umbral es mínimo ocurre a presiones

menores de 1 Torr. Para una presión de 6 Torr de  $\text{CH}_3\text{I}$  la energía de descarga umbral es  $\approx 110 \text{ J}$  [50] .

Comparando entre sí los resultados reseñados en la bibliografía para los diversos yoduros se llega a las siguientes conclusiones:

a) El máximo de la energía de salida para los diversos compuestos sigue la secuencia [47] , [103] :  $\text{i-C}_3\text{F}_7\text{I} > \text{n-C}_3\text{F}_7\text{I} > \text{CF}_3\text{I} > \text{C}_2\text{F}_5\text{I} > \text{CD}_3\text{I} > \text{CH}_3\text{I}$ , si bien no hay diferencias significativas entre el  $\text{i-C}_3\text{F}_7\text{I}$  y el  $\text{n-C}_3\text{F}_7\text{I}$ .

b) El  $\text{CF}_3\text{I}$  suministra mayor energía de salida que el  $\text{CD}_3\text{I}$  a todas las presiones excepto las más bajas, existiendo un punto de cruce a bajas presiones ( $\sim 5$  Torr) donde el  $\text{CD}_3\text{I}$  se convierte en algo más eficiente [148] . La menor energía de salida se obtiene en todos los casos con el  $\text{CH}_3\text{I}$ .

c) Cuando la sustancia de trabajo es un compuesto fluorado existe operación láser repetitiva, o sea, se obtiene emisión láser en descargas sucesivas sin necesidad de renovar la sustancia en la cámara de reacción [91] , [103] , [56] , [117] . Por el contrario, cuando el sustrato es  $\text{CH}_3\text{I}$  se ha reseñado la carencia de operación láser repetitiva [103] , [131] .

Estudios teóricos acerca de la duración de los pulsos de salida en el láser de fotodisociación de yodo, así como acerca de las condiciones que gobiernan el umbral de la emisión estimulada se presentan en [60] , [94] . Estudios experimentales del espectro de modos transversales y longitudinales en diversas condiciones del láser de yodo se encuentran en [167] , [103] , [168] . Condiciones para conseguir operación lá

ser en un único modo longitudinal se discuten en [169], [167], [107] .

#### 2.2.5.2. Inhomogeneidades e índice de refracción

La fotólisis de destello puede producir cambios importantes en el índice de refracción que presentan las diversas sustancias de trabajo [149], [54], [170], [150], [171], [172], [151], [173]. Este hecho puede ser importante para la propagación de pulsos en sistemas láser de todo de alta potencia que emplean ioduros de alquilo como medio activo en los amplificadores. En este contexto se deben distinguir dos fenómenos. El primero de ellos es la onda de choque generada por el destello y que se propaga desde las paredes hacia el centro del tubo láser a una velocidad próxima a la del sonido. Como señalaron Golubev et al [150] los gases adsorbidos en las paredes del tubo son evaporados por el destello y originan ondas de choque que viajan por el medio láser. Estas ondas de choque van acompañadas por una abrupta perturbación del índice de refracción produciendo gradientes de densidad que distorsionan el frente de onda del haz láser y destruyen la calidad del haz.

En segundo lugar, hay una variación suave del índice de refracción típica de la parte central del tubo amplificador que todavía no ha sido alcanzada por la onda de choque. Este efecto ha sido generalmente adscrito al proceso de fotólisis [149], [171]-[173]. Witte [151] muestra que el prerrequisito para que este último fenómeno ocurra es la existencia de una velocidad de fotólisis (número de disociaciones por unidad de volumen y unidad de tiempo) espacialmente inhomogénea, lo que conduce a un gradiente de temperatura transversal que no será posible en el caso

de una velocidad de fotólisis espacialmente homogénea. Si existe tal gradiente de temperatura (y, por tanto, también un gradiente de presión) el gas se pondrá en movimiento lo que origina cambios en su densidad y, por tanto, en el índice de refracción. Esto puede originar distorsiones del frente de onda del pulso independientes de la intensidad, las cuales pueden ser difíciles de corregir.

Un estudio de las inhomogeneidades del medio y variaciones del índice de refracción cuando el bombeo se realiza por medio de descargas de alta intensidad en la mezcla de trabajo se puede encontrar en [152] , [174] , [175] .

#### 2.2.5.3. Generación de pulsos cortos de alta energía

Han sido resueltos un cierto número de problemas relacionados con la generación de pulsos de corta duración y alta energía en un sistema láser de iodo. Por pulsos cortos en este contexto entendemos pulsos de duración comprendida entre  $10^{-7}$  y  $10^{-9}$  s. Dependiendo de su aplicación la energía en el pulso láser varía entre varios miliJulios y varios cientos de Julios. La duración de los pulsos viene determinada por el oscilador, que crea pulsos de baja energía mientras que la energía total del pulso es suministrada en las etapas de amplificación.

En el oscilador se pueden generar pulsos de corta duración por diversos procedimientos. Pulsos de duración comprendida entre  $5 \times 10^{-8}$  y  $5 \times 10^{-7}$  s se pueden generar con dispositivos denominados "conmutadores de ganancia" [56] , [176] , [177] (para una explicación del mecanismo llamado "conmutador de ganancia" ver apartado 3.5.4). Pulsos entre 3 y 50 ns

se pueden conseguir bien por métodos de cortado de pulsos [178], [56] o con elementos interruptores situados en el oscilador. Este último método envuelve el uso de conmutadores de Q (Q-switching) [65], [179], [67] o absorbentes saturables [180] - [186]. Pulsos de 0,1 a 3 ns de duración se pueden conseguir por técnicas de fijación de amplitudes y fases de los modos (mode-locking) [172], [187], [184], [65]. Pulsos de 100 ps se han conseguido combinando la técnica de fijación de amplitudes y fases de los modos con el método de decaimiento libre de inducción (FID) [188] empleado en primer lugar por Yablonovitch y Goldhar para generar pulsos cortos en el láser de  $\text{CO}_2$  [189].

El pulso de corta duración procedente del oscilador alimenta un canal amplificador. Los problemas de amplificación de la emisión espontánea en las secciones amplificadoras se pueden eliminar ensanchando las anchuras a media altura de la transición por medio de la adición al medio activo de un gas diluyente adecuado [89], [190], [92]. Se puede obtener una buena calidad del haz inyectando en el amplificador el pulso procedente del oscilador antes de que las ondas de choque inducidas por la lámpara de destello se hayan propagado lejos desde las paredes del tubo de fotólisis. El ensanchamiento por la presión de la transición en el amplificador tiene la ventaja adicional de asegurar un buen solapamiento entre la salida del oscilador, usualmente en la componente hiperfina 3  $\longrightarrow$  4, y esta transición en los amplificadores, puesto que produce una degeneración efectiva de las componentes Zeeman de la transición debidas a la presencia de los campos magnéticos originados por las lámparas de destello. En el caso en que la presión en los amplificadores no sea lo bastante alta, se presenta, además, un problema de

eficiencia. Cuando un pulso con una sola frecuencia (debida a la transición  $F' = 3 \longrightarrow F = 4$ ) se amplifica con una presión menor que 1 atmósfera en la mezcla activa los átomos del subnivel  $F' = 2$  no participan en el proceso de amplificación aunque su energía representa el 42% de la energía almacenada en el nivel superior  $^2P_{1/2}$  [157]. Esto es debido a que la relajación entre los subniveles  $F' = 3$  y  $F' = 2$  no es lo bastante rápida. La eficiencia de tal amplificador se puede mejorar buscando una señal de entrada de dos frecuencias cuyo espectro contenga también las frecuencias correspondientes a la transición  $F' = 2 \longrightarrow F = 2$  [191], [105], [82].

La capacidad del láser de fotodisociación de iodo para generar pulsos de salida de alta potencia fue puesta de manifiesto por primera vez por DeMaria y Ultee [49] que obtuvieron en 1966 pulsos de 65 J en 1,5  $\mu$ s de duración. En 1970, como ya indicamos al comienzo de esta sección, comenzó un estudio sistemático del láser de iodo como generador de pulsos de alta potencia en el Instituto Max Planck de Alemania Occidental [178], [102], [190], [70], [191], [95], y algo más tarde comenzaron estudios similares en el Instituto de Física Lebedev de Moscú [192], [71], [154], [152], [156], [157], [82], [174]. En la instalación alemana se han obtenido pulsos de 300 J en 1 ns, estando el láser diseñado para obtener energía de salida de 1000 J en 1 ns [70]. En la instalación rusa se han obtenido hasta el momento pulsos de 200 J en 1 ns [157].

La propagación de pulsos en un láser amplificador de iodo de alta potencia se trata teóricamente en [193] - [195], [103], [98], [196], [197].



#### 2.2.6. Ventajas y desventajas del láser de fotodisociación de iodo. Problemas pendientes

Hemos presentado a lo largo de este capítulo un breve resumen de los hechos más relevantes relacionados con el láser de fotodisociación de iodo. Como ya hemos indicado anteriormente el láser de iodo atómico basado en la fotodisociación de los perfluoro alquil ioduros, especialmente  $n\text{-C}_3\text{F}_7\text{I}$  y  $i\text{-C}_3\text{F}_7\text{I}$ , ha demostrado capacidad práctica para generar pulsos cortos de salida de alta energía, lo que lo convierte en un sistema de interés en conexión con los experimentos de fusión y de producción de plasma. En este contexto, este sistema láser tiene ciertas ventajas y ciertas desventajas con respecto a los restantes sistemas láser existentes de alta energía. Las principales ventajas son:

1) Escalabilidad: no se han presentado hasta la fecha serios problemas en alcanzar energías de salida cada vez más altas.

2) El medio amplificador es capaz de almacenar grandes densidades de energía. Así, se ha informado de almacenamientos de  $5\text{--}7 \text{ J/cm}^2$  [95].

3) La longitud de onda de la emisión,  $1,315 \mu\text{m}$ , si bien no tan corta como sería deseable para experimentos de fusión inducida por láser, es comparable con la de los láseres disponibles de Neodimio. Además, el sistema láser de iodo no tiene los problemas de auto-focalización y daños en el material que ocurren en los láseres de Neodimio.

4) Se pueden obtener haces de salida del sistema oscilador/amplificador (es) con muy alta calidad, comparable o mejor que la que se obtiene con los láseres de  $\text{Nd,CO}_2$  o HF. El principal problema en el láser de iodo

en conexión con la obtención de haces de salida de elevada calidad radica en la existencia de ondas de choque que viajan de manera aproximadamente radial y que originan inhomogeneidades en el índice de refracción del medio amplificador.

Las principales desventajas del láser de fotodisociación de iodo son las siguientes:

1) Eficiencia eléctrica global relativamente baja. La eficiencia cuantica de este láser ( = energía de salida como radiación láser/energía suministrada en la banda de fotólisis) es relativamente alta, >20%, pero esto es compensado por la incapacidad de las lámparas de destello de generar eficientemente fotones ultravioleta en las bandas fotodisociativas de absorción de los perfluoro alquil y alquil ioduros. Como resultado, la eficiencia global es algo menor del 1%.

2) Irreversibilidad fotolítica. Durante el proceso de la fotólisis no todo el sustrato descompuesto se regenera a sí mismo. Se produce siempre alguna conversión irreversible en iodo molecular, el correspondiente perfluoro alcano o alcano y otros productos. Por tanto, la composición del medio láser se altera a lo largo de los disparos sucesivos, siendo finalmente necesario rellenar el sistema con material fresco.

Ninguna de estas dos desventajas impide, no obstante, el uso de un sistema láser de iodo para la generación y amplificación de pulsos de corta duración, aunque en términos prácticos la irreversibilidad no es un hecho afortunado.

Los procesos físicos y químicos básicos que ocurren en el medio en un láser de fotodisociación de yodo son los responsables tanto de las ventajas como de las desventajas tecnológicas del mismo. Está, pues, claro que una mejora en la comprensión de estos procesos tiene un enorme interés y es tecnológicamente deseable. Aunque se conoce bastante, como hemos visto, acerca de ciertos fenómenos muy importantes en este sistema láser, existe todavía un gran número de otros fenómenos que se comprenden solamente en forma parcial o han sido poco considerados. Así, por ejemplo, en los trabajos sobre la fotólisis de destello del medio activo el principal objetivo es el cálculo de las constantes de velocidad de los procesos elementales y se incluye muy poca información acerca de la formación de productos y el mecanismo general de la fotólisis. En particular, no ha sido considerada la posible participación en los mecanismos de la fotólisis y operación láser de las bandas de absorción centradas por debajo de 200 nm. Fenómenos como la abrupta extinción de la oscilación láser (antes incluso de que el destello haya alcanzado su valor máximo) cuando se utiliza  $\text{CH}_3\text{I}$  como medio activo se han atribuido a una mal definida "pirólisis". Hay poca información acerca del papel de la irreversibilidad fotolítica del medio láser en la determinación del comportamiento del láser en la operación repetitiva (emisiones sucesivas sin necesidad de renovar el sustrato con material fresco), así como acerca de la influencia de la presencia de diversos gases diluyentes sobre los mecanismos y diversos parámetros de la operación láser.

Nuestro objetivo consiste entonces en clarificar los diversos aspectos oscuros de la operación láser y determinar los procesos que realmente regulan la misma en el láser de fotodisociación de yodo, lo que fa-

cilitará el control de los mismos con la consiguiente mejora en el rendimiento de la operación. A estos efectos, hemos tratado de definir más precisamente la operación láser basados en un análisis detallado de las características de la emisión, ganancia del sistema y productos formados después de la operación láser bajo una amplia variedad de condiciones. Así, hemos estudiado la influencia de la velocidad de bombeo, adición de diversos gases inertes ( $\text{Ar}$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SF}_6$ ), energía de descarga y longitud de onda de irradiación. Se ha discutido asimismo la influencia de los diversos procesos químicos sobre la operación láser.

Hemos realizado nuestro estudio utilizando  $\text{CH}_3\text{I}$  como medio activo. A pesar de su alto rendimiento en la producción por fotólisis de destello de átomos de yodo en el estado excitado ( $\approx 92\%$ , apartado 2.2.1), el yoduro de metilo es, como hemos visto en el apartado 2.2.5.1, un sustrato pobre comparado con los perfluoro alquil yoduros y su potencia de salida es claramente menor. En particular, usando yoduro de metilo como sustrato se había reseñado la carencia de operación láser repetitiva y la oscilación láser se extingue repentinamente antes de la terminación del destello de bombeo [103], [131], [1], [2], [47], [50], [148]. Parte de estas características no deseables se pueden adscribir a la rápida desactivación del yodo excitado por el sustrato, puesto que la constante de velocidad de este proceso es, en este caso, mil veces mayor que con los perfluoro alquil yoduros [131], [79]. No obstante, nosotros pensamos que precisamente estas dificultades intrínsecas convierten al yoduro de metilo en una herramienta más sensible a efectos de comprender algunos detalles finos de la operación láser; detalles que pueden quedar oscurecidos por hechos positivos cuando se utilizan otros sustratos.

### III. MONTAJE DEL DISPOSITIVO EXPERIMENTAL Y PUESTA A PUNTO DEL SISTEMA

#### LASER

##### 3.1. CAVIDAD OPTICA

La cavidad óptica del sistema láser es, como se ha indicado anteriormente (apartado 1.2.2), un resonador abierto consistente en un par de espejos reflectantes opuestos. Los espejos que hemos utilizado para formar la cavidad (Broomer Research Corp.) son ambos del mismo radio de curvatura y sus superficies externas están recubiertas de oro. Las características de los mismos son las siguientes:

radio de curvatura .....	2 m
diámetro .....	2,54 cm
espesor .....	0,64 cm
reflectividad (a 1,315 $\mu$ m) ..	(98 $\pm$ 1)%

La configuración deseable para la cavidad sería la confocal que, de acuerdo con lo expuesto en el apartado 1.2.2, permite una ganancia máxima con un mínimo volumen del reactor, presenta la máxima discriminación contra los modos transversales de orden alto y es la configuración con mayor tolerancia al alineado. Ahora bien, en el diagrama de confinamiento o estabilidad para resonadores ópticos (figura 9) se comprueba fácilmente que tal configuración se encuentra en el límite entre las regiones de pequeñas y de grandes pérdidas y, por tanto, cualquier pequeña desviación de los parámetros podría originar una configuración con pérdidas extremadamente altas. A fin de estar seguros de que nos situamos en la región de pequeñas pérdidas tomamos entonces la longitud L de la

cavidad óptica menor que el radio  $r$  de curvatura de los espejos. Así, con los espejos utilizados de 2 m de radio de curvatura, la longitud de la cavidad fue de 1,10 m, con lo que la configuración resultante es intermedia entre la confocal y la de grandes radios (apartado 1.2.2). Con los espejos utilizados y la separación escogida entre los mismos nos mo vemos todavía en la zona de máxima tolerancia al alineado [29-a] .

Los espejos se montaron sobre soportes adecuados para permitir una correcta alineación de la cavidad óptica. Inicialmente se utilizaron unos soportes que permitían el movimiento del plano de los espejos en torno a los ejes horizontal y vertical [198] , pero estos movimientos no eran independientes entre sí, lo que dificultaba y hacía engorroso el alineamiento. Por este motivo fueron sustituidos por soportes de precisión (Oriel 1450) que permiten movimientos independientes en torno a los ejes horizontal y vertical (figura 16). Estos movimientos, suaves y altamente precisos, se obtienen por medio de dos tornillos micrométricos. La resolución es de 1 segundo y la precisión de ajuste de aproximadamente 6 segundos, tomados desde el dial del tornillo micrométrico. El rango de ajuste micrométrico es de  $\pm 8^\circ$  en torno al eje vertical y de  $\pm 4^\circ$  en torno al eje horizontal.

La célula láser (cámara de reacción) está formada por un tubo de cuarzo cuyos extremos están unidos a adecuadas rótulas exentas de grasa (Rotulex) por medio de Araldite (figura 17). El cuarzo utilizado ha sido de calidad Spectrosil (Thermal Syndicate) el cuál permite el paso de radiación de longitud de onda mayor que 165 nm. Se han usado tubos de cuarzo de 0,75 y 1,4 cm de diámetro interno y de 50 cm de longitud. Los

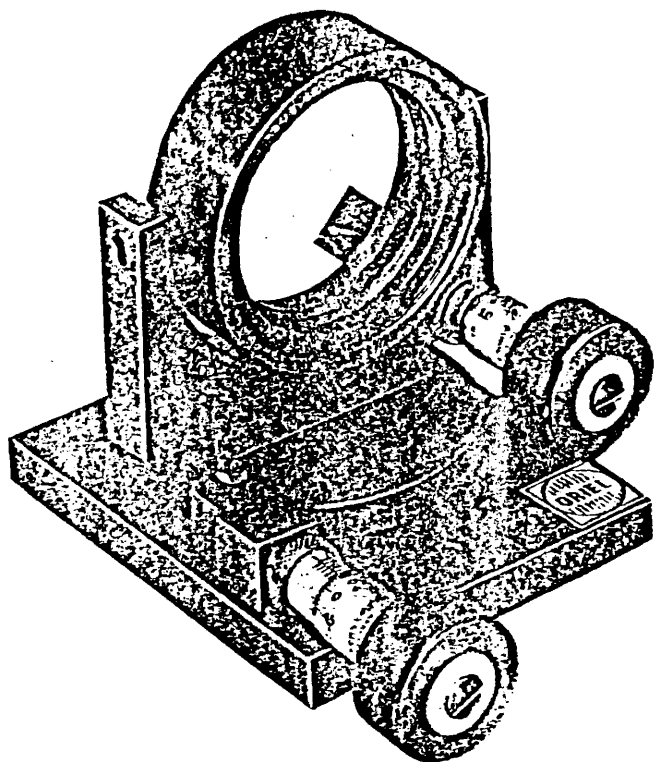


Figura 16.- Soporte de los espejos que cierran a ambos lados la cavidad láser.

terminales de las rótulas unidas al tubo láser están cortados a bisel, de modo que el ángulo formado por el eje del tubo de reacción y la normal a la sección en este punto sea en uno de los casos el ángulo de Brewster y en el otro un ángulo  $10^\circ$  menor. A estos terminales se unen ventanas adecuadas por medio de Araldite. La ventana que queda situada a un ángulo  $10^\circ$  menor que el de Brewster será utilizada para extraer de la cavidad óptica una fracción del pulso láser (apartado 1.2.4). Las ventanas utilizadas fueron de zafiro (pulido láser) y cubreobjetos de microscopio. El ángulo de Brewster para el zafiro (índice de refracción a  $\lambda = 1,315 \mu\text{m}$ ,  $n = 1,75$ ) es de  $60,3^\circ$  y para los cubreobjetos de microscopio usados ( $n = 1,67$  a  $\lambda = 1,315 \mu\text{m}$ ) es de  $59,5^\circ$ . La longitud total de la célula láser (tubo de reacción + rótulas + terminales de la rótulas) fue de  $67 \text{ cm}$ .

Las pérdidas inherentes a la cavidad para la longitud de onda de  $1,315 \mu\text{m}$  y para una oscilación completa del pulso láser se estiman en un  $(22 \pm 1)\%$  cuando se usaron ventanas de zafiro y en un  $(30 \pm 2)\%$  cuando se usaron cubreobjetos de microscopio (apartado 4.4.2.1).

### 3.2. SISTEMA DE BOMBEO

El método de bombeo que hemos empleado es el de fotólisis de destello. Inicialmente se utilizaron una unidad de carga (máximo  $20 \text{ kV}$ ) y un banco de condensadores de descarga rápida con una capacidad de  $8 \mu\text{F}$  de la casa Applied Photophysics Ltd. En algunos experimentos se añadió un condensador de  $10 \mu\text{F}$  (Hivotronic) con lo que la capacidad total del sistema fue entonces de  $18 \mu\text{F}$ . Posteriormente se utilizó una unidad de



carga (máximo 20 kV) construída expresamente para este fin en el Laboratorio de Técnicas Especiales del Instituto de Química Física "Rocasolano". Ambas unidades de carga se calibraron por medio de un Supertester (680 R.I.C.E.; sensibilidad: 20000  $\Omega$  por voltio) acoplado a una punta de alta tensión (I.C.E. 18) que soporta 25000 V en c.c. Se obtuvo de este modo una recta de calibrado que permite determinar los voltios reales que corresponden a los marcados en el voltímetro adosado a las unidades de carga.

En la puesta a punto del sistema se utilizó una lámpara de destello de Xenon (Applied Photophysics) dispuesta paralelamente al tubo láser, acoplando ópticamente la lámpara y el tubo por medio de papel de aluminio. En todo el trabajo posterior (excepto en algunos experimentos aislados en que se indicará explícitamente) se utilizaron lámparas de destello concéntricas al tubo de reacción construidas por nosotros. A estos efectos se utiliza un tubo de Pyrex de 42 cm de largo y 2,6 cm de diámetro interno que se sitúa concéntrico al tubo láser, de modo que la cámara entre ambos se rellena con Xe y forma la lámpara de destello (figura 17). Los electrodos de tales lámparas los constituyen las mismas piezas metálicas de cierre (figura 18) pegadas al tubo de Pyrex por medio de Araldite. Para rellenar la lámpara se utilizó una presión de 13 mm de Xe N35 (Seo). Con esta presión de llenado las características del circuito son tales que trabajamos en la región en que la radiación de bombeo presenta un mínimo tiempo de subida (tiempo transcurrido desde el inicio del destello hasta alcanzar el máximo valor de la intensidad del mismo) y un máximo de intensidad de salida en la zona ultravioleta (figura 19) (Un estudio detallado de las características del circuito empleado y de

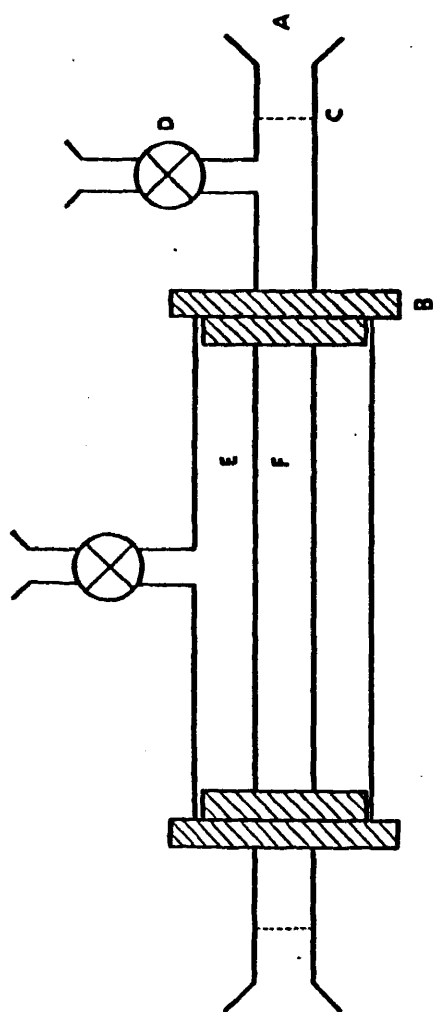


Figura 17.- Esquema de la lámpara de destello concéntrica al tubo láser: A, rótulas de vidrio; B, electrodos de acero inoxidable; C, unión cuarzo-vidrio (pegado con Araldite); D, llaves de Teflón; E, cavidad que actúa como lámpara de destello, con tubo exterior de vidrio pvrex; F, tubo láser de cuarzo.

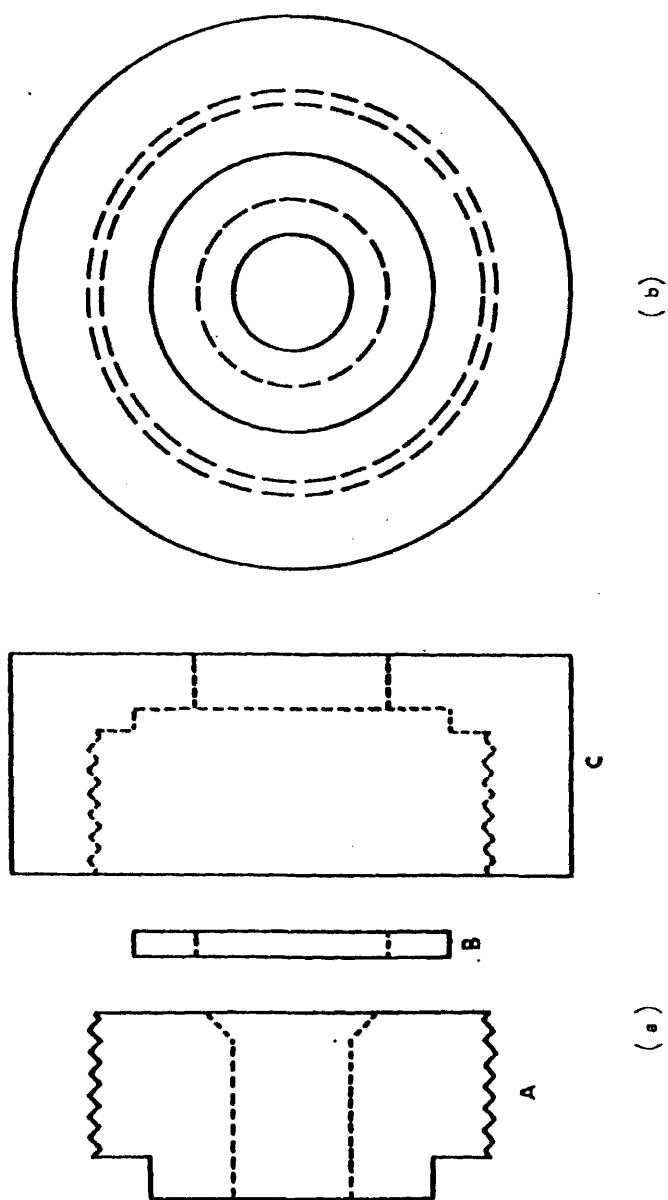


Figura 18.- Lámpara de destello concéntrica: electrodos. (a) Electrodo despiezado visto de perfil. En la cavidad de la pieza A se sitúa una junta tórica, la cual es presionada por la pieza B. Se impide así la penetración de aire a través del electrodo en la cavidad E de la figura 17. (b) Electrodo armado visto de frente.

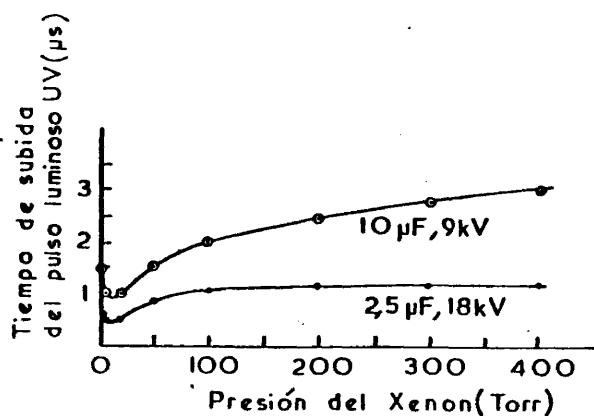


Figura 19.- (a) Dependencia del tiempo de subida del pulso luminoso UV con la presión del Xenon [199] .

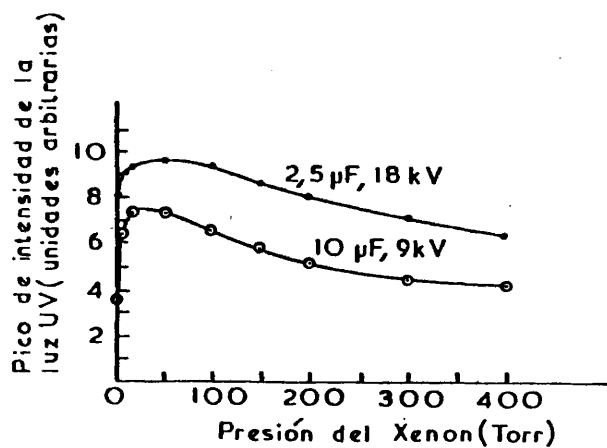


Figura 19.- (b) Dependencia del pico de la intensidad luminosa en el UV con la presión del Xenon [199] .

las lámparas de destello usadas se presenta en la sección 3.5). Las lámparas se recubren exteriormente con papel de aluminio, lo que facilita el acoplamiento óptico con el tubo láser. A fin de poder detectar las características de la radiación emitida por la lámpara se deja descubierto un espacio de unos 3 cm en un extremo de la misma.

Las razones por las que se prefiere un montaje de lámpara de destello concéntrica al tubo láser a un montaje con la lámpara situada paralelamente al mismo son de homogeneidad y aprovechamiento de la energía radiada. Cuando se utilizan lámparas de destello dispuestas paralelamente al tubo láser se produce una distribución inhomogénea de ganancia en el medio amplificador, [151], lo que origina la aparición de modos transversales de orden alto en la radiación láser [168]. Esto motiva una pérdida en la calidad o coherencia espacial del haz de radiación emitido [27-a], [151]. Asimismo, para un mayor aprovechamiento de la energía radiada por la lámpara es necesario disponerla en el interior de una cavidad reflectante elíptica, de modo que la lámpara ocupe uno de los focos y el láser el otro. Si bien se pueden construir reflectores con materiales que presentan alta reflectancia a longitudes de onda de la zona 250-300 nm [200] (zona a la que pertenece una de las bandas de absorción de los alquil ioduros y perfluoro alquil ioduros, apartado 2.2.1), la presencia de aire entre la lámpara de destello y el tubo láser motiva la práctica total absorción de las longitudes de onda correspondientes a las bandas de absorción del ioduro de metilo centradas en torno y por debajo de 200 nm [201-a]; bandas que, tal como mostraremos en la presente memoria, juegan un importante papel en el mecanismo del láser de fotodisociación de iodo estudiado por nosotros. El uso de la lámpara concéntrica al tubo

láser obvia estos problemas. Existe otra importante razón para la utilización de lámparas concéntricas al tubo láser, que tiene que ver con el campo magnético creado por la lámpara en el medio láser. Como el campo magnético dentro de un anillo cilíndrico uniforme de corriente es nulo, una descarga totalmente homogénea en el anillo que rodea al tubo láser no produciría campo magnético en el interior del mismo. Podemos, pues, concluir que el empleo de lámparas concéntricas al tubo láser minimiza el campo magnético en el interior del mismo (la descarga no es totalmente homogénea), mientras que cuando la lámpara se dispone paralelamente al tubo láser se generan en el medio de trabajo campos magnéticos inhomogéneos que pueden ser considerables. Como ya se discutió en el apartado 2.2.2.3, la presencia de tales campos magnéticos afecta de manera importante a la emisión láser: provocan cambios en las ganancias selectivas de las diversas líneas, producen un ensanchamiento de la emisión, bajan el pico de ganancia y retardan el comienzo de la señal [68], además de crear inestabilidades en el medio [104]. Es, pues, muy importante eliminar o minimizar dichos campos magnéticos indeseables, a fin de mantener en todo momento un control adecuado sobre las condiciones en que tiene lugar la emisión láser.

Los electrodos de acero inoxidable que cierran las lámparas concéntricas requieren un tratamiento especial. Si, una vez colocados y llena la lámpara con la presión adecuada de Xe, se comienzan a efectuar descargas sucesivas, se observa que la intensidad del destello disminuye al cabo de cuatro o cinco descargas; permanece estable durante unas quince descargas más y, finalmente, la lámpara cesa de dispararse, incluso cuando se utilizan los voltajes de carga más altos de que podemos dispo-

ner. En el transcurso de las descargas sucesivas los electrodos se han ido ennegreciendo paulatinamente por el depósito sobre los mismos de sustancias liberadas por deadsorción en las paredes de la lámpara y en el propio electrodo [202] , [203] , proceso que es el responsable de que finalmente la lámpara deje de dispararse. Estos problemas pueden evitarse [204] , [205] evacuando la lámpara tras los primeros cuatro o cinco disparos, a fin de eliminar las sustancias deadsorbidas e impedir que se depositen en los electrodos, y volviendo a cargarla inmediatamente con Xe. En estas condiciones , tras dos o tres disparos se estabiliza la intensidad del destello y la lámpara soporta perfectamente varios cientos de descargas, sin que ahora se ennegrezcan en absoluto los electrodos.

Cuando la capacidad total del circuito de descarga fue de 8  $\mu$ F, las características espectroscópicas del destello de las lámparas comerciales de Xe usadas para el montaje en paralelo fueron:

anchura del destello a media altura ..  $\sim 14 \mu$ s  
tiempo de subida .....  $\sim 8 \mu$ s

Cuando, en las mismas condiciones se usaron las lámparas concéntricas al tubo láser, las características espectroscópicas del destello fueron:

anchura a media altura .....  $\sim 30 \mu$ s  
tiempo de subida .....  $\sim 10 \mu$ s

El destello presenta en este caso un segundo máximo, menos intenso que el del primero, a  $\sim 22 \mu$ s del comienzo del mismo. Este segundo máximo es debido a que el circuito no está ahora críticamente amortiguado (apartado 3.5.4). En la figura 20 se muestra uno de los destellos tí

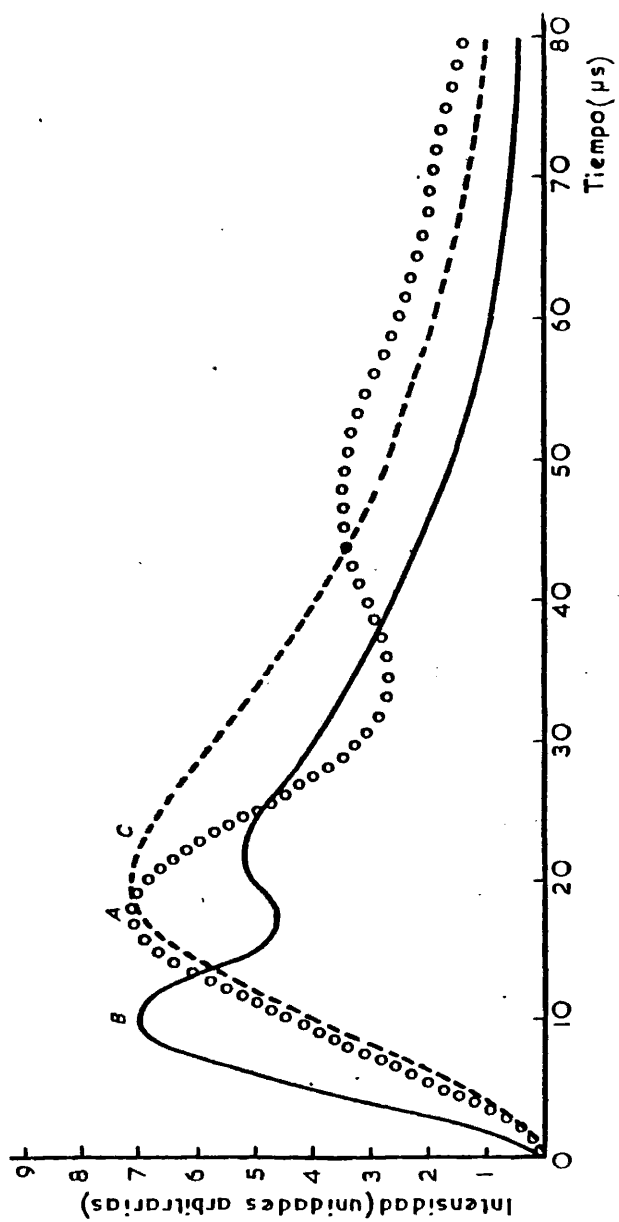


Figura 20.- Destellos típicos emitidos por la lámpara para diversas capacidades del circuito de descarga: A, 18  $\mu\text{F}$ ; B, 8  $\mu\text{F}$ ; C, 18  $\mu\text{F}$  y régimen crítico.



picos emitidos en este caso por las lámparas concéntricas.

Cuando la capacidad total del circuito fue de  $18 \mu\text{F}$ , las características espectroscópicas del destello correspondiente a las lámparas comerciales de Xe fueron:

anchura a media altura .....	$\sim 20 \mu\text{s}$
tiempo de subida .....	$\sim 15 \mu\text{s}$

Cuando las lámparas usadas son las concéntricas, se tiene:

anchura a media altura .....	$\sim 21 \mu\text{s}$
tiempo de subida .....	$\sim 18 \mu\text{s}$

En este ultimo caso el segundo máximo del destello aparece en torno a  $48 \mu\text{s}$  (En el caso de la lámpara concéntrica vemos que si bien el tiempo de subida del destello se ha hecho más lento que cuando la capacidad del circuito era de  $8 \mu\text{F}$ , la anchura a media altura se ha hecho menor. La razón estriba en que cuando la capacidad del circuito es de  $18 \mu\text{F}$  el mínimo existente entre los dos máximos del destello queda situado por debajo de la mitad de la altura máxima del destello, por lo que la anchura a media altura que tomamos en este caso corresponde únicamente al primer pico del destello, figura 20-A. Por el contrario, cuando la capacidad del circuito es de  $8 \mu\text{F}$  dicho mínimo queda por encima de la mitad de la altura máxima del destello, por lo que en la anchura a media altura están incluidos los dos picos del destello, figura 20-B).

### 3.3. SISTEMA DE DETECCION DEL DESTELLO Y DEL PULSO LASER

El comportamiento temporal de la radiación de bombeo emitida

por la lámpara de destello fue seguido por medio de un fotodiodo de rápido tiempo de subida (MRD-500, Motorola) alimentado con una fuente de corriente continua de 18 V (figura 21). Las características del fotodiodo son:

tiempo de respuesta .....	< 1,0 ns
sensibilidad de radiación .....	0,0012 mA/mW/cm <sup>2</sup>
	(Mínima)
.....	0,0018 mA/mW/cm <sup>2</sup>
	(Típica)

siendo sensible en el rango espectral correspondiente al visible e infrarrojo cercano.

El fotodiodo se conecta a un osciloscopio de almacenaje Hewlett-Packard (modelo 184 A) dotado de dos velocidades de escritura y conjugado con un amplificador vertical de dos canales (modelo 1801 A) y una base de tiempos y generador de retardo (modelo 1821 A). Los límites de sensibilidad de este conjunto son de 1 mV/div y 0,1  $\mu$ s/div. El fotodiodo se montó en el interior de una caja metálica provista de un pequeño agujero que permite que la radiación incida sobre el detector. La caja se orienta de tal modo que la señal que se obtiene en la pantalla del osciloscopio no sea mayor que 1 V.

El pulso de luz en que consiste la señal de salida del láser, procedente de la ventana que limita al tubo de reacción situada 10° fuera del ángulo de Brewster, se focaliza, por medio de un espejo de oro de 1,50 m de radio de curvatura, sobre un detector de infrarrojo de antimonio de indio (RPY 77, Mullard), cuyas características son las siguientes:

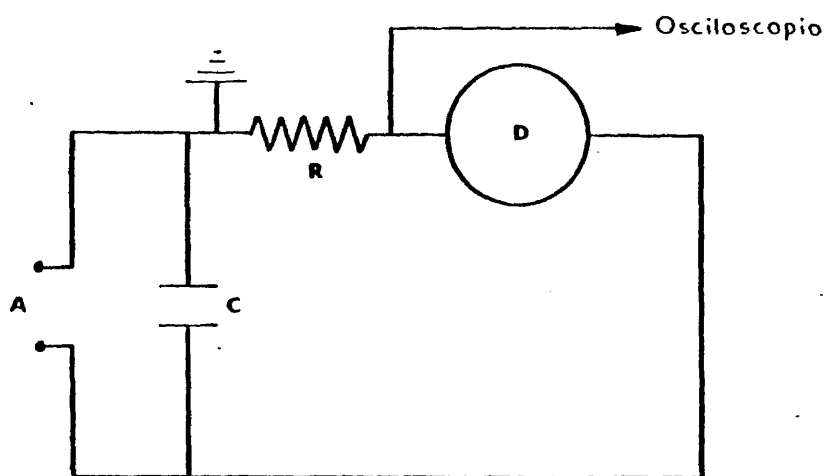


Figura 21.- Circuito de detección del destello: D, fotodiodo; R, resistencia de  $10\text{ k}\Omega$ ; C, condensador de  $100\text{ pF}$ ; A, fuente de alimentación de  $+18\text{ V c.c.}$

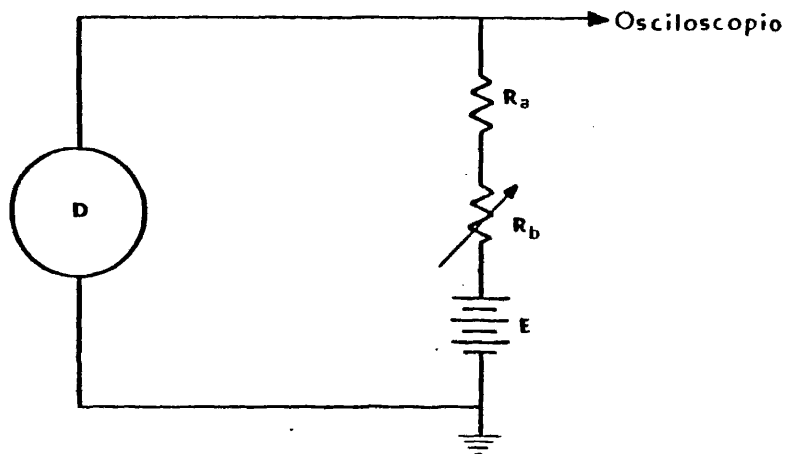
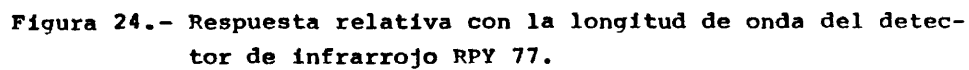
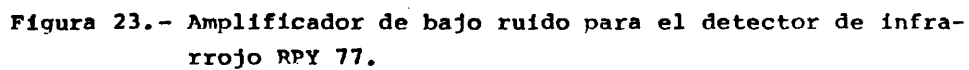


Figura 22.- Circuito de detección del pulso láser; D, detector de infrarrojo de InSb (resistencia interna  $920\Omega$ );  $R_a$ , resistencia de  $560\Omega$ ;  $R_b$ , potenciómetro de  $1000\Omega$ ; E, fuente de alimentación de  $27\text{ V}$ .



destinado al uso con radiación pulsada o modulada  
dimensiones del elemento fotoconductor ... 2,0 x 2,0 mm  
amplitud de campo de visión ..... 120 grados  
rango de respuesta espectral ..... visible a 7,5  $\mu\text{m}$   
máxima respuesta ..... entre 5.0 v 6.0 $\mu\text{m}$   
(figura 24)  
temperatura de operación ..... 20 °C  
constante de tiempo ..... < 0,1  $\mu\text{s}$ .  
resistencia del elemento ..... 950  $\Omega$   
respuesta .....  $\geq 1 \text{ V/W}$   
alimentación típica ..... 10 mA

El detector se alimentó con pilas (3 pilas de 9 V cada una) a fin de obtener una corriente estable de alimentación y se alojó en una pieza metálica que realiza la función de sumidero de calor, puesto que, como se comprende fácilmente, el calor desarrollado por la corriente de alimentación disminuiría su eficacia. Dada la naturaleza fotoconductiva del detector, el pulso láser al incidir sobre el mismo provoca una disminución en su resistencia y, por tanto, en la del circuito (figura 22), lo que se traduce en una variación de la caída de potencial. Tal variación se puede registrar por medio de un osciloscopio que reúna los requisitos necesarios.

La señal de salida del detector de infrarrojo se envió a un osciloscopio digital de memoria Nicolet 1090 A conjugado con un amplificador vertical y base de tiempos (modelo 94 A). La memoria del mismo consta de 4096 palabras de 12 bits cada una y se puede usar o completa o en dos partes de 2048 palabras cada una o en cuatro partes de 1024 palabras

ada una. Los límites de sensibilidad del conjunto son de  $\pm 100$  mV toda la escala y de 100 ns por punto de tiempo de barrido. Este osciloscopio fue posteriormente sustituido por un Registro de Transitorios Datalab (DL 922) que posee una memoria standard de 2048 palabras de 8 bits cada una. La memoria se puede dividir en dos mitades a fin de recoger datos con una mitad mientras se retienen en la otra mitad datos correspondientes a un barrido previo. A estos efectos el aparato dispone de dos entradas con un rango de 100 mV a 50 V. El rango del tiempo de barrido es de 100  $\mu$ s a 4 s para las primeras 2000 palabras de la memoria. Se tiene la posibilidad de registrar la señal de entrada en el aparato en el llamado modo pre-disparo. En este caso un control de retardo permite determinar el número de puntos que se desean registrar antes del comienzo del barrido correspondiente a la señal de entrada. Se puede de este modo obtener información acerca de la línea base antes del comienzo de la señal, así como registrar la forma de la señal tanto antes como después del punto correspondiente al comienzo del barrido, con un control preciso de la cantidad de información recogida antes y después de dicho punto. El Registro de Transitorios presenta salidas a un osciloscopio y un registro de gráficas, así como salida digital a una perforadora de cinta, teletipo, etc., vía una interfase digital.

Las señales almacenadas en el Registro de Transitorios se visualizaron por medio de un osciloscopio Tektronix 536 y se dibujaron por medio de un registro Yokogawa 3046 cuya sensibilidad es de 0,5 mV a 100 V por 100 divisiones y cuyo rango de velocidades es de 2 cm/h a 60 cm/min. Este mismo registro se utilizó también para dibujar las señales recogidas en el osciloscopio de memoria Nicolet anteriormente descrito.

Con los osciloscopios se trabajó en régimen de barrido único. El comienzo del barrido se controló por medio de una señal externa. El circuito de barrido del osciloscopio Hewlett-Packard se disparó mediante la señal inducida en una espira, situada próxima a la lámpara de destello, por el campo magnético originado en el exterior de la lámpara durante la descarga. Cuando este osciloscopio se dispara se origina en una de sus salidas una señal en forma de pozo de  $-2,5$  V, la cual se utilizó como señal externa para iniciar el barrido tanto en el osciloscopio digital de memoria como en el Registro de Transitorios. En las medidas se tomó como tiempo cero el tiempo de comienzo del destello.

El análisis espectral del pulso láser puede lograrse haciendo lo pasar a través de un monocromador de alta resolución, situando el detector de infrarrojo en la rendija de salida de aquél. Asimismo, es interesante el bifurcar el pulso antes de su entrada en el monocromador, ya que de este modo se pueden comparar, sobre la pantalla del osciloscopio, las señales correspondientes al pulso global y la correspondiente a la longitud de onda que señala el marcador del monocromador. El monocromador utilizado es uno de  $0,5$  m (Jarrell-Ash) dotado de una red de difracción intensificada a  $2,1$   $\mu\text{m}$ . La alineación y calibrado del monocromador se efectuó con la ayuda de un láser comercial de He-Ne ( $\lambda=632,8$  nm) encontrándose una desviación, con la red de difracción de infrarrojo, de  $0,5$  nm en la lectura del contador. El pulso láser global y el que se registró después de pasar a través del monocromador (ajustado para permitir el paso de radiación de  $\lambda=1,315$   $\mu\text{m}$ ) tuvieron exactamente las mismas características, confirmando que la radiación de salida de la cavidad ó

tica está formada íntegramente por radiación coherente de  $\lambda=1,315 \mu\text{m}$ , correspondiente a la transición  $5^2P_{1/2} \longrightarrow 5^2P_{3/2}$  del iodo atómico.

En la figura 25 se ha representado esquemáticamente el dispositivo experimental. Cuando se utilizó el monocromador para efectuar el análisis espectral del pulso láser, el dispositivo experimental fue el esquematizado en la figura 26.

#### 3.4. SISTEMA DE ALTO VACÍO

Para el manejo y purificación de los productos usados, así como para introducir los mismos en la cámara de reacción, se ha utilizado una línea de alto vacío, con llaves de teflón y juntas sin grasa. Dicha línea, cuyo esquema puede verse en la figura 27, está construida con tubo de vidrio Pyrex de 15 mm de diámetro interno y consta de las siguientes partes:

- a) Dieciséis llaves de cierre de teflón (Young Acton), que permiten aislar entre sí distintas secciones de la línea de vacío, y dos llaves "Pobel" de grasa de triple paso.
- b) Siete rótulas de vidrio (Rotulex) que permiten unir a la línea de vacío los tomamuestras, ampollas con diversos gases y globos con mezcla de trabajo.
- c) Un manómetro de mercurio; un manómetro Pirani (Modelo AV-64-01, Alto Vacío S.A.), y un "Penning" (Modelo G, Edwards). El manómetro Pirani tiene escala graduada desde 1 Torr hasta  $10^{-3}$  Torr y el Penning desde  $10^{-3}$  Torr a  $10^{-7}$  Torr. Las cabezas de ambos se conectan a la línea de





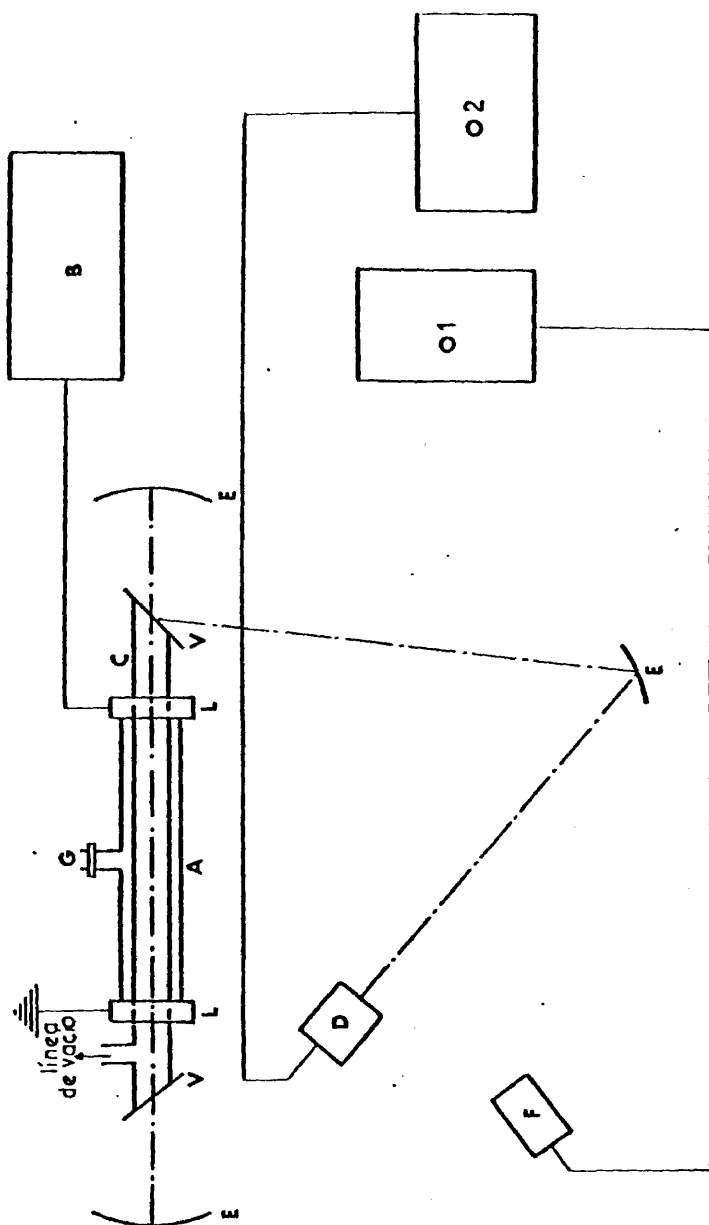


Figura 25.- Diagrama esquemático del dispositivo experimental: A, lámpara de destello; B, banco de condensadores; C, tubo láser; D, detector de infrarrojo; E, espejos curvos con superficies externas de oro; F, fotodiodo rápido; G, entrada de gas; L, electrodos; O1, osciloscopio; O2, registro de transitorios u osciloscopio de memoria; V, ventanillas al ángulo de Brewster.

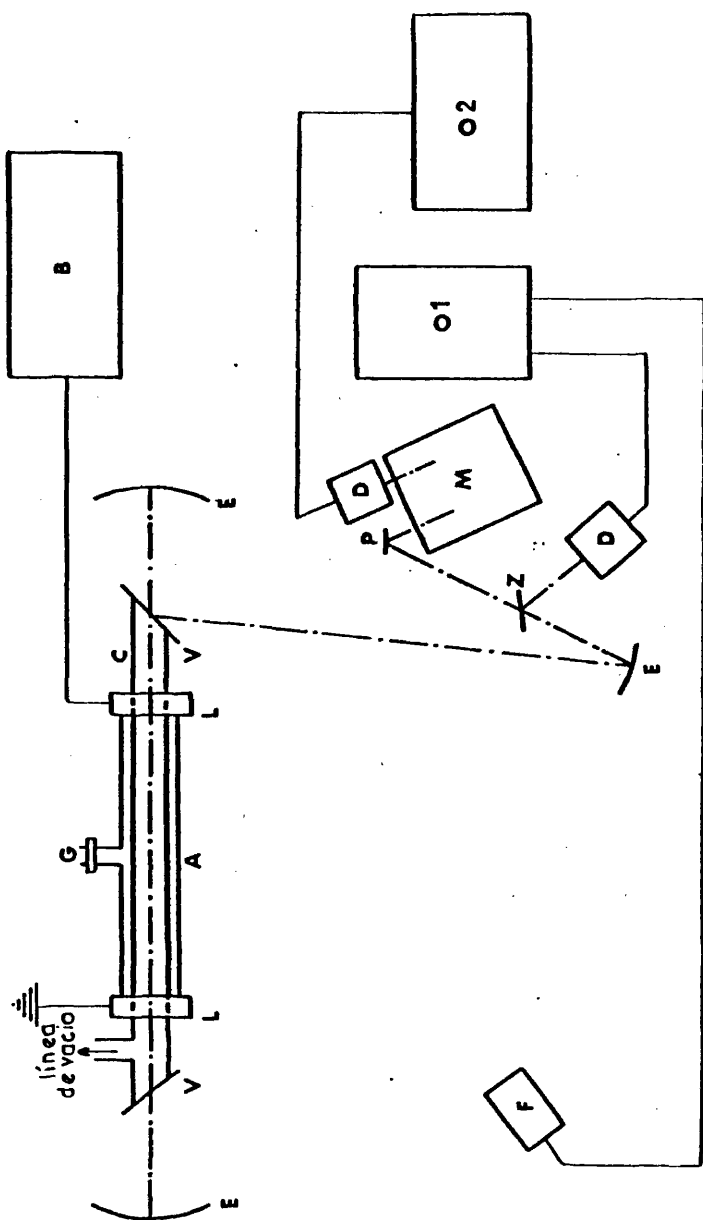


Figura 26.- Diagrama esquemático del dispositivo experimental utilizado para efectuar al análisis espectral del pulso: A, lámpara de destello; B, banco de condensadores; C, tubo láser; D, detectores de infrarrojo; E, espejos curvos con superficies externas de oro; F, fotodiodo rápido; G, entrada de gas; L, electrodos; M, monocromador; O1, osciloscopio; O2, registro de transitorios u osciloscopio de memoria; P, espejo plano con superficie externa de oro; V, ventanas al ángulo de Brewster; Z, ventana de zafiro.

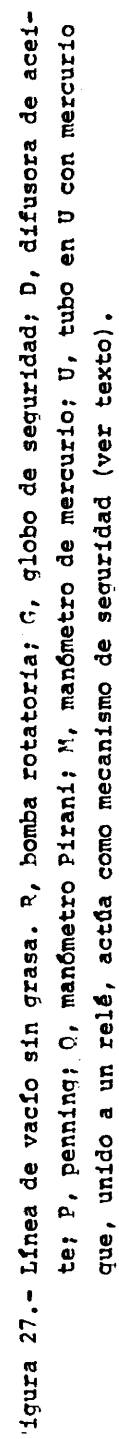


Figura 27.- Línea de vacío sin grasa. R, bomba rotatoria; G, globo de seguridad; D, difusora de acetate; P, penning; Q, manómetro Pirani; M, manómetro de mercurio; U, tubo en U con mercurio que, unido a un relé, actúa como mecanismo de seguridad (ver texto).

vacío mediante sendos conos de vidrio y una llave de teflón.

d) Una zona de producción de vacío. Está constituida por una bomba rotatoria de aceite, a paletas (Oliveras, tipo 013), con la que se consigue un vacío del orden de  $10^{-3}$  Torr, y una difusora de aceite con la que se consigue un vacío dinámico  $\geq 10^{-6}$  Torr. Esta zona está aislada del resto de la línea por un borboteador enfriado a la temperatura del nitrógeno líquido. Un segundo borboteador, a la misma temperatura, se intercala entre la difusora de aceite y la bomba rotatoria. Entre la bomba rotatoria y el resto de la línea se intercala un globo de seguridad para impedir la inundación de la línea por el aceite en caso de avería.

Entre la difusora de aceite y la bomba rotatoria se ha intercalado, asimismo, un mecanismo de seguridad que desconecta automáticamente la difusora en el caso de que, por una avería, entre aire en la línea de vacío. Este mecanismo de seguridad consiste esencialmente en un manómetro de mercurio en forma de U conectado a un relé por medio de dos terminales de tungsteno, situados uno en cada rama de la U. El manómetro se une a la línea de vacío a través de uno de sus brazos. En condiciones de vacío, el mercurio alcanza la misma altura en ambas ramas, conectando los terminales entre sí. Si entra aire en la línea la presión del mismo disminuye la altura del mercurio en el brazo del manómetro conectado a la línea de vacío; el mercurio cesa de hacer contacto con el terminal correspondiente, se abre el circuito, y el relé desconecta la resistencia que calienta el aceite de la difusora.

Las dos llaves de triple paso marca "Pobel", que están situa-

das en la zona de producción de vacío, se engrasan con grasa de alto vacío (Edwards), estable hasta una temperatura de 45°C.

### 3.5. CARACTERISTICAS DEL CIRCUITO DE DESCARGA Y DE LA LAMPARA DE DESTELLO

Como ya hemos indicado anteriormente, obtenemos la radiación de bombeo del medio láser descargando un banco de condensadores a través de la lámpara de destello. Parece, pues, conveniente, que consideremos con algo de detalle los complejos procesos que tienen lugar en la lámpara durante la descarga, así como las características del circuito constituido por la lámpara de destello y los condensadores.

#### 3.5.1. Descargas de alta intensidad en gases

Las descargas pulsadas de alta intensidad de corriente en gases han sido estudiadas minuciosamente durante los pasados 25-30 años, tanto en conexión con nuevos métodos de observación de procesos de muy corta duración como a causa de la urgencia de sus aplicaciones técnicas y científicas (producción de plasmas a alta temperatura para reacciones termonucleares, fuentes de luz pulsadas, técnicas de alto voltaje, trabajado de metales por erosión eléctrica, etc.). El desarrollo de los láseres produjo asimismo un gran énfasis en todo lo referente al incremento de la eficiencia de las fuentes luminosas de alta potencia utilizadas para el bombeo de los mismos. Aunque se han publicado numerosos artículos y revisiones (ver, por ejemplo [203]) sobre el tema de las lámparas de destello, algunos fenómenos concernientes a las mismas no son todavía bien conocidos. La complejidad y multiplicidad de aspectos que pre

senta el destello son abrumadores desde un punto de vista analítico. El modelado de un sistema de este tipo no ha sido considerado seriamente hasta el momento a causa de la gran cantidad de procesos que intervienen, así como a causa de la presencia de magnitudes todavía indeterminadas. Esta última afirmación no significa que no se hayan hecho cálculos para elucidar ciertos hechos macroscópicos de tales descargas [203] , [206] , [207] , [208] sino que la compresión cuantitativa de ciertos aspectos tales como el comportamiento espectral detallado no es, hasta el momento, posible.

Una lámpara de destello consiste en un plasma altamente ionizado contenido en un tubo de cuarzo. El crecimiento de la densidad de corriente durante el proceso de ionización del plasma es debido a una serie de procesos en avalancha que entran en acción sucesivamente, uno tras otro, a velocidades cada vez más altas. Estos procesos son [202] : ionización de impacto por los electrones (ionización  $\alpha$  o primaria); procesos secundarios en el cátodo (ionización  $\gamma$ ); interacción entre las ionizaciones  $\alpha$  y  $\gamma$  ; interacción entre la ionización primaria, fotoionización en el mismo gas y la carga espacial concentrada en la cabeza de la corriente de plasma en crecimiento (streamer), etc. En el canal de plasma que se origina en el gas tras la cabeza de la corriente de plasma en crecimiento se establece un gradiente eléctrico longitudinal, que es igual a la razón entre la diferencia de potencial a través del canal y la longitud del canal. Si la fuente de alimentación de la descarga tiene suficiente capacidad como para permitir que la diferencia de potencial a lo largo del canal exceda en muchas veces la caída de potencial en el electrodo, se originará en el canal, bajo la influencia de un gra

diente eléctrico longitudinal apreciable, una intensa avalancha, que es característica de una alta ionización en la densidad de corriente.

A la vista del considerable grado de excitación e ionización del gas en el canal y a causa de la importante y simultánea influencia de unas partículas sobre las otras, las diversas interacciones elementales entre los átomos, electrones, iones y fotones no se pueden considerar separadamente. Lo adecuado es hablar de una ionización térmica resultante en el gas, o de algo análogo a esta ionización en el caso de equilibrio térmico incompleto. La avalancha producida en el canal por el gradiente eléctrico longitudinal es entonces consecuencia de la ionización térmica del gas; ionización que se incrementa bajo la influencia de la energía disipada en el canal y de la potencia eléctrica desarrollada en la descarga. Esta potencia aumenta como resultado del incremento en la densidad de corriente originado por el aumento de ionización. La temperatura deja de aumentar cuando la potencia disipada en la descarga por la corriente eléctrica se hace igual a la potencia radiada, que crece más rápidamente con la temperatura.

### 3.5.2. La lámpara como un elemento del circuito

Cuando un condensador se descarga a través de un tubo lleno de gas se asume un circuito como el mostrado en la figura 28, siendo la ionización del gas el equivalente al cierre de un interruptor intercalado en el circuito. Los primeros intentos de optimización de un tal circuito [209] , [210] supusieron que la lámpara actuaba como una resistencia constante. Esta suposición no es demasiado simplista: experimentalmente

se había determinado [203] que en el caso de un canal de descarga de diámetro constante limitado por las paredes de un tubo suficientemente estrecho (como es el caso de las lámparas de destello tubulares), la variación del voltaje según transcurre la descarga era muy próxima a la que se obtiene en la descarga de un condensador a través de una resistencia constante, de modo que una descarga de este tipo puede ser adscrita a alguna resistencia óhmica efectiva constante.

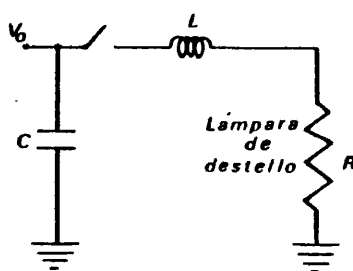


Figura 28

La ecuación diferencial para este circuito RLC es:

$$L \frac{di}{dt} + Ri + \frac{1}{C} \int_0^t i dt = V_0 \quad (3.1)$$

donde la inductancia, capacitancia y resistencia distribuidas a través del circuito se han agrupado en  $L$ ,  $C$  y  $R$ , respectivamente. Hemos llamado  $i$  a la corriente de la descarga y  $V_0$  al voltaje inicial sobre el capacitor.

La ecuación (3.1) se puede simplificar por medio del cambio de variables:

$$I = iV_0^{-1} (L/C)^{1/2} : \tau = t(LC)^{-1/2} \quad (3.2)$$

Las magnitudes  $I$  y  $\tau$  serán llamadas en lo sucesivo corriente y tiempo normalizados, respectivamente. Usando (3.2), la ecuación (3.1) queda:

$$\frac{dI}{d\tau} + 2\alpha I + \int_0^\tau I d\tau = 1 \quad (3.3)$$

donde

$$\alpha = \frac{1}{2} R (C/L)^{1/2} \quad (3.4)$$



Se trata, pues, de una ecuación dependiente de un solo parámetro:  $\alpha$ . Cuando  $\alpha$  es menor que la unidad la corriente es oscilatoria y exponencialmente amortiguada; para  $\alpha = 1$  se tiene amortiguamiento crítico, y para  $\alpha > 1$  el circuito es aperiódico.

Wooding [209] , [210] utilizó la ecuación (3.3) para determinar el pico de corriente, potencia y duración a media altura de la corriente a través de la lámpara de destello para valores de  $\alpha$  comprendidos entre  $10^{-2}$  y 10, comparando a continuación los valores experimentales con los computados. Si bien los valores computados no están totalmente de acuerdo con los experimentales, son lo bastante buenos como para poder utilizarlos en el diseño de circuitos con lámparas de destello, proporcionando la información necesaria para obtener transferencia óptima del capacitador al tubo de destello y para estimar duraciones a media altura, potencia y picos de corriente. Dichos resultados indican que la anchura a media altura del pico de corriente es una función monótonamente creciente con  $\alpha$  cuando  $\alpha > 1$  y una función discontinua cuando  $\alpha < 1$  teniendo un valor mínimo para  $\alpha \approx 0,2$ . El tiempo de subida del pulso de radiación es menor que el de la corriente, y la medida del tiempo para el que la intensidad de la radiación decae del 99% al 1% de su valor en el pico tiene un máximo en la región de  $\alpha \approx 0,2$ . La duración del pulso de radiación es casi dos veces la del pulso de corriente y más de tres veces la del pulso de potencia eléctrica. Estas relaciones son consistentes con la utilización inicial de la potencia en producir un plasma y en el calentamiento óhmico del canal de descarga establecido, con la subsecuente liberación de ionización y energía térmica como radiación.

En el año 1965 Goncz publicó un artículo [211] que se convirtió en la llave para todo el análisis posterior. Goncz midió la resistividad ( $\rho$ ) del plasma para un conjunto de lámparas de Xenon con tamaños que iban desde 0,13 cm de diámetro interno por 0,63 cm de longitud de arco hasta 2,8 cm de diámetro interno por 30 cm de longitud de arco, encontrando que se relacionaba con la densidad de corriente ( $j$ ) de acuerdo con la expresión:

$$\rho = (1,13/j^{1/2}) \Omega \times \text{cm} \quad (3.5)$$

donde  $j$  está en  $\text{A/cm}^2$ . La resistencia de la lámpara es entonces:

$$R_1 = \frac{4}{\pi} \rho \frac{l}{d^2} = \frac{1,28}{d} \frac{l}{|j|^{1/2}} \quad (3.6)$$

donde  $l$  es la longitud de la lámpara entre los electrodos,  $d$  es el diámetro interno de la misma e  $i$  es la corriente en amperios. La constante 1,13 que aparece en la ecuación (3.5) (y, por tanto, la constante 1,28 de la ecuación (3.6)) no es tal, sino que resulta depender de la presión de llenado de la lámpara. Escribiendo la ecuación (3.6) en la forma:

$$R_1 = K \frac{1}{d |i|^{1/2}} \quad (3.7)$$

se tiene para el Xenon [212] :

$$K = 1,28 (p/450)^{0,2} \quad (3.8)$$

donde  $p$  es la presión en Torr. Para el Kriptón se debe sustituir el 1,28 de (3.8) por 1,0. En lo que sigue escribiremos, por comodidad:

$$R_1 = K_0 / |i|^{1/2} \quad (3.9)$$

donde:

$$K_0 = K \frac{1}{d} \quad (3.10)$$

El voltaje de la lámpara de destello se puede entonces representar por:

$$V_1 = V_e \pm K_o |i|^{1/2} \quad (3.11)$$

donde  $V_e$  es la caída de potencial en los electrodos. En la mayoría de las lámparas  $V_e$  vale entre 10 y 20 v [211] y apenas contribuye a la caída de potencial total del tubo, por lo que puede despreciarse. Se tiene, pues, finalmente:

$$V_1 = \pm K_o |i|^{1/2} \quad (3.12)$$

donde el signo se escoge de modo que sea el mismo que el de  $i$ .

La resistencia no lineal de las lámparas de destello fue incorporada por Markiewicz y Emmett [207] es un análisis similar al de Wooding, desarrollando una teoría dependiente de dos parámetros [207] , [213] . Es de señalar que la incorporación de la resistencia no lineal de la lámpara de destello origina solamente pequeñas diferencias en el valor calculado del pico de corriente con respecto a los resultados obtenidos por Wooding.

La ecuación para el circuito es ahora:

$$L \frac{di}{dt} \pm K_o |i|^{1/2} + R_s i + \frac{1}{C} \int_0^t i dt = V_o \quad (3.13)$$

donde además de la resistencia de la lámpara se ha considerado una pequeña resistencia del circuito ( $R_s$ ), presente en todos los sistemas prácticos. Haciendo las sustituciones y normalizaciones siguientes:

$$\begin{aligned} Z_o &= (L/C)^{1/2} ; \alpha = K_o / (V_o Z_o)^{1/2} ; \tau = t/T \\ T &= (LC)^{1/2} ; I = (Z_o / V_o) i ; \beta = R_s / Z_o \end{aligned} \quad (3.14)$$

la ecuación(3.13) se convierte en:

$$\frac{dI}{d\tau} \pm \alpha |I|^{1/2} + \beta I + \int_0^{\tau} I d\tau = 1 \quad (3.15)$$

dependiente de los parámetros  $\alpha$  y  $\beta$ . El parámetro  $\alpha$  da cuenta del régimen del circuito (amortiguado o no) y el parámetro  $\beta$  (que en muchas aplicaciones es tan pequeño que su efecto apenas se deja sentir) tiene en cuenta las pérdidas resistivas en el circuito. Para valores dados de  $Z_0$ ,  $V_0$  y del pico de corriente, la solución de la ecuación no lineal es más amortiguada que la correspondiente al caso lineal. El amortiguamiento crítico en el caso en que  $\beta = 0$  corresponde al valor  $\alpha \approx 0,77$ , disminuyendo el valor de  $\alpha$  para el que el régimen es crítico conforme va aumentando el valor de  $\beta$ . Así, para un valor típico de  $\beta$  de 0,1, el amortiguamiento crítico se obtiene para  $\alpha = 0,72$ . Se encuentra que la anchura y la amplitud del pulso correspondientes a las soluciones [207] críticamente amortiguadas cambian en un 5% o menos cuando  $\beta \leq 0,60$ , si se pone  $\beta = 0$  en dicha ecuación (3.15).

La ecuación (3.12) es aplicable solamente cuando el arco de la descarga está totalmente establecido y llena el diámetro del tubo, de modo que el análisis anterior no considera el periodo durante la formación del arco. Ahora bien, al comienzo de la descarga el arco arranca usualmente como un fino hilo de plasma apoyado contra la pared interna del tubo de la lámpara, requiriéndose una cierta cantidad de tiempo para que el diámetro del arco se incremente hasta llenar todo el tubo. Durante este tiempo la impedancia del tubo de destello cae desde un valor muy alto a su valor correspondiente al régimen en que el arco llena el tubo.

El hilo de plasma en que consiste inicialmente el arco se expande a una velocidad determinada primariamente por la razón  $E/p$  entre el campo eléctrico y la presión de llenado [199]. Esta fase de expansión controla el crecimiento inicial de la corriente en el tubo y de la intensidad luminosa. Resultados experimentales indican que la porción inicial de un pulso corto, correspondiente a la etapa de crecimiento del arco, tiene un  $\alpha$  efectivo menor que el que proporciona el modelo estático [207].

Ya en trabajos tempranos [203], [211], se había presentado evidencia de que el periodo de expansión del arco era rápido, del orden de 5  $\mu s$  para tubos de 0,4 mm de diámetro interno y de aproximadamente 50  $\mu s$  para un diámetro interno de 1,3 cm. Comparados con las longitudes de los pulsos entonces de interés estos tiempos eran muy cortos y el periodo de crecimiento del plasma fue despreciado, usandose para la resistencia no lineal de la lámpara la ecuación (3.7), donde  $d$  era el diámetro interno del tubo. Más tarde se hizo aparente que bajo ciertas condiciones el crecimiento del arco era mucho más lento y que frecuentemente, a bajas energías de entrada, el arco se expandía solamente a una porción del diámetro del tubo. Como consecuencia de estos efectos, no tenidos en cuenta para la teoría de dos parámetros, los picos de corriente predichos por ésta eran siempre más altos que los experimentales, llegando a ser el error de un 45% para bajas energías de entrada [208].

Dishington et al [208] introdujeron la dinámica del crecimiento del arco en la teoría redefiniendo la resistencia de la lámpara como:

$$R_1 = K \frac{1}{d_a |i|^{1/2}} \quad (3.16)$$

donde  $d_a$  es el diámetro del arco en el instante considerado. En términos de la constante  $K_0$  introducida en la ecuación (3.10) la ecuación (3.16) se escribiría:

$$R_1 = \frac{K_0}{\delta |i|^{1/2}} \quad (3.17)$$

donde:

$$\delta = \frac{d_a}{d} \quad (3.18)$$

es la razón entre el diámetro del arco en el instante considerado y el diámetro interno de la lámpara de destello.

Debido a que el diámetro del arco es una variable adicional en el sistema su dependencia temporal se debe encontrar en términos de los parámetros del sistema y de la corriente. En [208] se determinaron empíricamente los parámetros que controlan el crecimiento del arco, encontrándose que el diámetro del mismo depende de la cantidad de energía entregada a la lámpara. Los datos indican que durante algún tiempo el arco crece sin ser influido por las paredes de la lámpara. Durante esta fase inicial de la expansión independiente del diámetro de la lámpara el diámetro del arco se expande de acuerdo con la relación:

$$d_a \approx 1,5 (\epsilon/l)^{0,6} \quad (3.19)$$

donde  $d_a$  y  $l$  están en cm y  $\epsilon$  es la energía total, en julios, que ha entrado en la lámpara hasta el tiempo en que se está determinando  $d_a$ , o sea:

$$\epsilon = \int_0^t i^2 R_1 dt \quad (3.20)$$

En algún punto de la expansión la presencia de las paredes de la lámpara se convierte en importante y comienza un nuevo régimen con

una menor velocidad de expansión. El mecanismo de confinamiento en el régimen dependiente de las paredes parece controlar la razón  $d_a/d$  de acuerdo con la relación:

$$\bar{\delta} = \frac{d_a}{d} \simeq 0,77 (\epsilon/l)^{0,077} \quad (3.21)$$

El punto de cambio del régimen de arco libre al dependiente de las paredes es función del diámetro de la lámpara. El cambio ocurre cuando  $\bar{\delta} = \bar{\delta}_c$ , siendo:

$$\bar{\delta}_c \simeq 0,7 d^{0,15} \quad (3.22)$$

En los casos de alta energía el diámetro del arco frecuentemente no excede el valor  $0,8 d$  y, incluso cuando lo hace, la expansión del restante  $0,2d$  tiene lugar en un último esfuerzo muy al final del pulso de corriente. Para bajas energías de entrada no se alcanza ni tan siquiera el punto de cambio  $\bar{\delta}_c$  y la lámpara opera durante toda la duración del pulso en el régimen de arco libre. Cuando estos fenómenos de crecimiento de arco se incorporan al análisis, se encuentra buen acuerdo entre los valores experimentales y los calculados.

A efectos de incorporar la dinámica del arco en las ecuaciones del circuito la ecuación (3.9) es sustituida por la (3.17), con lo que la ecuación (3.15) se escribe ahora:

$$\frac{dI}{d\tau} + \frac{\alpha}{\bar{\delta}} |I|^{1/2} + \beta I + \int_0^\tau I d\tau = 1 \quad (3.23)$$

Como  $\bar{\delta}$  es una función de  $I$ , a fin de obtener una solución para  $I$  es necesario usar una segunda ecuación juntamente con la (3.23). Esta se puede obtener combinando (3.14), (3.17) y (3.20), de donde:

$$\bar{\epsilon} = 2\alpha \bar{E}_{in} \int_0^\tau (|I|^{3/2} / \bar{\delta}) d\tau \quad (3.24)$$

siendo

$$\bar{\epsilon} = \epsilon/l; \bar{E}_{in} = E_{in}/l; E_{in} = \frac{1}{2} CV_0^2 \quad (3.25)$$

con  $l$  dado en centímetros.  $E_{in}$  es la energía de entrada almacenada originalmente en C.

Por razones de conveniencia en la escritura y en la computación, se utilizan las derivadas con respecto al tiempo de  $\bar{\epsilon}$  y  $\bar{\delta}$ . Volviendo atrás, las ecuaciones (3.19) y (3.21) se pueden escribir:

$$\frac{d\bar{\delta}}{d\tau} = \frac{0,9}{d} \bar{\epsilon}^{-0,4} \frac{d\bar{\epsilon}}{d\tau}, \quad \bar{\delta} \leq \bar{\delta}_c \quad (3.26)$$

$$\frac{d\bar{\delta}}{d\tau} = 0,0593 \bar{\epsilon}^{-0,923} \frac{d\bar{\epsilon}}{d\tau}, \quad \bar{\delta} \geq \bar{\delta}_c$$

y la (3.24)

$$\frac{d\bar{\epsilon}}{d\tau} = 2\alpha \bar{E}_{in} (|I|^{3/2} / \bar{\delta}) \quad (3.27)$$

Combinando otra vez (3.26), (3.27), (3.19) y (3.21):

$$\frac{d\bar{\delta}}{d\tau} = 1,2\alpha \bar{E}_{in} \left( \frac{1,5}{\bar{\delta}_d} \right)^{5/3} |I|^{3/2}, \quad \bar{\delta} \leq \bar{\delta}_c \quad (3.28)$$

$$\frac{d\bar{\delta}}{d\tau} = 0,154\alpha \bar{E}_{in} \left( \frac{0,77}{\bar{\delta}} \right)^{13} |I|^{3/2}, \quad \bar{\delta} \geq \bar{\delta}_c$$

Las ecuaciones (3.23) y (3.28) son dos ecuaciones diferenciales en las incógnitas  $\bar{\delta}$  y  $I$  que, cuando se resuelven simultáneamente, proporcionan el valor instantáneo de la corriente como una función del tiempo. Los resultados que se obtienen a partir de esta teoría de tres paráme



tros ( $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\bar{E}_{in}$ ) para la forma del pulso de corriente, amplitud y anchura del mismo, se comparan bien con los experimentales, si bien, incluso en esta última teoría, la variación en el diámetro del arco cerca del final del pulso y otros ciertos efectos físicos originan que la corriente medida a tiempos tardíos del pulso difiera de la calculada. Estos efectos tardíos no afectan, en general, de modo significativo a la operación láser.

### 3.5.3. La lámpara como fuente de radiación de cuerpo negro. Características espectrales y emisión ultravioleta

Las lámparas de destello se suelen considerar como fuentes de radiación continua de cuerpo negro originada en el plasma caliente, encontrándose evidencia experimental a favor de esta hipótesis en las referencias [203] y [214] así como en las medidas de opacidad del plasma reseñadas en [213], [215], [216]. Ahora bien, el comportamiento de las lámparas de destello como fuentes de radiación de cuerpo negro es solamente aproximado, de modo que las lámparas no radian como cuerpos negros perfectos, sino que solamente se aproximan a ello como un límite. Cuando se incrementa la energía de descarga la radiación emitida tiende a aproximarse hacia el límite del cuerpo negro. Esto ocurre porque al incrementar la energía de descarga (y por tanto la corriente) también se incrementa la densidad de electrones. Concomitante con el incremento de la densidad de electrones es la aparición de altos estados de ionización: la condición de opacidad se alcanza más fácilmente para altos estados de ionización [217].

Una expresión aproximada (que aplicaremos más adelante ligera

mente modificada a nuestro sistema) para la temperatura efectiva de cuerpo negro correspondiente a una lámpara de destello fue obtenida por M.A. Gusinow [218] en base a las siguientes suposiciones: (i) la resistividad de la lámpara de destello es la de un plasma totalmente ionizado; (ii) se ignoran los efectos de los electrodos y de las paredes; (iii) la superficie del plasma radia como un cuerpo negro a la temperatura  $T$  y el plasma llena completamente el recipiente; (iv) entre el voltaje y la corriente se mantiene una relación tipo ley de Ohm, siendo la "constante" de proporcionalidad llamada resistencia. El cálculo procede como sigue. La resistividad de un plasma Lorentziano (los iones se suponen infinitamente masivos y se ignoran las colisiones electrón-electrón) totalmente ionizado viene dada por:

$$\eta = 2,28 \times 10^4 / T^{3/2} \Omega \times \text{cm} \quad (3.29)$$

donde  $T$  es la temperatura del plasma en grados Kelvin. La resistencia ( $r$ ) del medio plasma se relaciona con la resistividad por medio de la expresión:

$$r = \eta L / \pi R^2 \Omega \quad (3.30)$$

donde  $L$  y  $R$  son la longitud y el radio del plasma en cm, respectivamente. La resistencia es, por tanto, función de la temperatura del plasma. El mecanismo físico responsable de la existencia de una temperatura sobre la ambiente es las colisiones de los electrones de conducción con las partículas cargadas del plasma. Por tanto, se encuentra la relación entre la temperatura del plasma y la corriente igualando la energía total de cuerpo negro radiada con el calentamiento óhmico de todo el volumen:

$$(2\pi RL) \sigma T^4 = (\pi R^2 L) \eta j^2 \quad (3.31)$$

donde  $a = 5,6 \times 10^{-12} \text{ W.cm}^{-2} \cdot (\text{°K})^{-4}$  y  $j$  es la densidad de corriente en  $\text{A.cm}^{-2}$ . El resultado es:

$$T = 603 (j\sqrt{R})^{4/11} \quad (3.32)$$

Se ha encontrado que esta aproximación concuerda con los resultados experimentales obtenidos bajo una amplia variedad de condiciones.

Medidas experimentales de transmisión óptica a través de una lámpara de destello muestran que la absorción se incrementa con la corriente y con la longitud de onda [203] , [216] , de modo que las longitudes de onda largas se aproximan al límite del cuerpo negro antes que las cortas cuando se incrementa la corriente. Los experimentos muestran asimismo [215] que el pulso luminoso en el ultravioleta es más corto que el pulso visible y que un cambio en la longitud del pulso altera la distribución espectral de la radiación, de modo que una reducción de la longitud del pulso incrementa la fracción de radiación ultravioleta y disminuye la fracción de radiación visible. En consecuencia, la mayor eficiencia para radiación ultravioleta se obtiene con pulsos de corriente rápidos, mientras que la radiación visible se libera más eficientemente en pulsos de corriente lentos.

Una investigación experimental detallada del comportamiento de la emisión ultravioleta de las lámparas de destello en la región 250-300 nm del espectro (donde se encuentra una de las bandas de bombeo del láser de fotodisociación de yodo) fue llevada a cabo por Baker y King [199] y por M.A. Gusinow [219] , [220] . Baker y King muestran que la salida ultravioleta es proporcional a la energía eléctrica de entrada para un rango considerable de energías de entrada y que la eficiencia de la pro-

ducción ultravioleta es prácticamente independiente de la presión de llenado de la lámpara para presiones de Xenon por encima de 50 Torr, aunque cambios en la presión originan cambios en el pico de intensidad, tiempo de subida del pulso luminoso y duración del mismo. En la región por debajo de 50 Torr hay una pérdida en la eficiencia, tanto más significativa cuanto mayor sea la capacidad del circuito. El mínimo tiempo de subida para el pulso luminoso se obtiene a presiones de aproximadamente 20 Torr de Xe y el óptimo del pico de intensidad se obtiene a una presión ligeramente mayor (figura 19).

M.A. Gusinow estudia la eficiencia espectral de la banda 250-300 nm en función de la presión de Xe, corriente de descarga y diámetro del tubo de la lámpara de destello. Con respecto a la influencia de la presión del Xe y de la corriente de descarga, sus conclusiones son similares a las ya citadas de Baker y King. En cuanto a la influencia del diámetro del tubo, encuentra que, para una energía dada del banco de condensadores, los tubos más estrechos se aproximan antes que los de mayor diámetro al límite de radiación del cuerpo negro. Para pulsos de corriente de 10  $\mu$ s y energías de descarga de 1000 J la emisión en la banda 250-300 nm se optimiza para diámetros del tubo en el rango 10-20 mm. Por último, muestra que la máxima eficiencia de emisión de fotones en la banda espectral 250-300 nm es del 10,8% a una temperatura efectiva de cuerpo negro del plasma de 18700 °K (es importante notar que esta temperatura maximiza el flujo de fotones, no la energía).

En las lámparas de destello se suele utilizar Xenon como gas de llenado, y así lo hemos hecho nosotros. La razón estriba en que en

la región de ondas cortas, y a una determinada energía de descarga, el Xenon es más eficiente que otros gases alternativos como He, Ne, Ar, N<sub>2</sub> o aire [203] , [213] , [199] , [220].

#### 3.5.4. Características del circuito de descarga empleado

Las lámparas utilizadas en nuestro sistema fueron descritas en el apartado 3.2. Según dijimos entonces la presión de Xe utilizada fue de 13 mm de mercurio, con lo que trabajamos en la región en que la radiación de bombeo en la zona ultravioleta del espectro presenta un mínimo de tiempo de subida y un máximo de intensidad de salida. Nos interesa que la radiación de bombeo tenga un tiempo de subida rápido a fin de trabajar en el llamado modo conmutador de ganancia (gain switch) cuyo mecanismo consiste en lo siguiente [56] , [167] . La ganancia en el medio láser sube tan rápidamente que alcanza y excede el umbral de oscilación en un intervalo de tiempo corto comparado con el tiempo de crecimiento de las oscilaciones láser. En estas condiciones la mayor parte de la energía se emite en un pico al comienzo de la señal de emisión láser.

El comportamiento temporal de la intensidad de la corriente durante la descarga de los condensadores a través de la lámpara de destello se registra en un osciloscopio por medio de una espira situada próxima a la lámpara. El campo magnético originado en el exterior de la lámpara durante la descarga induce en la espira una corriente cuyas variaciones son proporcionales a las de la corriente que circula por la lámpara. Tanto cuando utilizamos un banco de condensadores de 8  $\mu$ F como cuando la capacidad total del sistema se aumenta a 18  $\mu$ F, la señal que se obtiene es

una senoide amortiguada.

Cuando la capacidad de los condensadores fue de 8  $\mu\text{F}$ , y con un voltaje inicial en los mismos de  $V_0 = 17300 \text{ V}$ , el periodo  $T_c$  de la oscilación de la corriente fue de 30  $\mu\text{s}$  y la razón entre picos consecutivos de corriente fue  $I_n/I_{n+1}=4$ , donde por  $I_n$  representamos la intensidad del pico  $n$ -ésimo de corriente.

Como una primera aproximación al problema podemos suponer la resistencia de la lámpara como constante y aplicar la teoría de circuitos RLC. Tal como ya hemos discutido en el apartado 3.5.2 esta aproximación simple proporciona resultados aceptables. Cuando se descarga un condensador de capacidad  $C$  a través de un circuito con resistencia  $R$  y autoinducción  $L$ , y la resistencia  $R$  es menor que un valor crítico  $R_c = 2(L/C)^{1/2}$ , la corriente es oscilatoria y exponencialmente amortiguada (régimen pseudoperiódico), variando con el tiempo de acuerdo con la expresión [221-a] .

$$i = \frac{q_0}{w} (n^2 + w^2) e^{-nt} \sin wt \quad (3.33)$$

donde  $q_0$  es la carga inicial en el condensador:

$$q_0 = C \cdot V_0$$

y

$$w = \left( \frac{1}{LC} - \frac{R^2}{4L^2} \right)^{1/2}, \quad n = \frac{R}{2L} \quad (3.34)$$

El periodo de las oscilaciones de la corriente es:

$$T_c = \frac{2\pi}{w} = 2\pi \left( \frac{1}{LC} - \frac{R^2}{4L^2} \right)^{-1/2} \quad (3.35)$$

y el decremento logarítmico, o logaritmo del cociente entre dos máximos de corriente consecutivos, viene dado por:

$$\delta = \ln \frac{I_n}{I_{n+1}} = \frac{RT_C}{2L} \quad (3.36)$$

De (3.35) y (3.36) se obtiene fácilmente:

$$L = \frac{T_C^2}{C(4\pi^2 + \delta^2)} \quad (3.37)$$

de modo que si conocemos el periodo  $T_C$  y el decremento logarítmico  $\delta$  podemos determinar inmediatamente  $L$  y, a partir de (3.36),  $R$ . Para nuestro sistema se tenía:

$$C = 8 \mu F; V_O = 17300 V; T_C = 30 \mu s; I_n/I_{n+1} = 4 \quad (3.38)$$

de modo que aplicando (3.36) y (3.37) se obtiene:

$$\delta = 1,39; L = 2,72 \mu H; R = 0,25 \Omega \quad (3.39)$$

El valor crítico de la resistencia es  $R_C = 1,17 \Omega$ .

El tiempo al que ocurren los picos de intensidad se obtiene a partir de la condición  $di/dt = 0$ . Usando (3.33) se encuentra:

$$t_p = \frac{1}{w} \arctg \left( \frac{w}{n} \right) \quad (3.40)$$

El pico de intensidad vale entonces:

$$i_p = q_O (w^2 + n^2)^{1/2} e^{-nt_p} \quad (3.41)$$

donde hemos usado que

$$\arctg \left( \frac{w}{n} \right) = \arcsen \left[ \frac{w}{(n^2 + w^2)^{1/2}} \right]$$

Utilizando los valores (3.38) y (3.39) en (3.34), (3.40) y (3.41) se obtiene entonces:

$$t_p = 6,5 \text{ } \mu\text{s} \quad ; \quad i_p = 21900 \text{ A} \quad (3.42)$$

El valor obtenido para  $t_p$  concuerda bien con el experimental, que es  $\sim 7 \text{ } \mu\text{s}$ .

Nos interesa también conocer el valor de la intensidad eficaz o valor de la intensidad de una corriente continua que pasando por la resistencia R produce el mismo efecto Joule que la intensidad variable dada. La intensidad eficaz correspondiente a una corriente periódica  $i(t)$  de cualquier tipo (no necesariamente sinusoidal) se define como:

$$i_{ef} = \left[ \frac{1}{T_c} \int_0^{T_c} i(t)^2 dt \right]^{1/2} = (\bar{i}^2)^{1/2} \quad (3.43)$$

donde  $T_c$  es el periodo y representamos por  $\bar{i}$  el valor medio de la función  $i$  en el periodo  $T_c$ . Llevando (3.33) a (3.43) obtenemos:

$$i_{ef} = \frac{q_0}{2} \left[ \left( \frac{n^2 + w^2}{nT_c} \right) \left( 1 - e^{-2nT_c} \right) \right]^{1/2} \quad (3.44)$$

Usando los valores (3.38) y (3.39) en (3.34) y (3.44) se obtiene:

$$i_{ef} \approx 12167 \text{ A} \quad (3.45)$$

Como ya indicamos en el apartado 3.5.2. Wooding utiliza esta misma aproximación de considerar la resistencia constante. Podemos, pues, utilizar las gráficas por el obtenidas para efectuar algunas estimaciones. El parámetro de amortiguamiento  $\alpha$ , discutido en 3.5.2, vale en nuestro circuito:



$$\alpha = \frac{R}{R_c} = 0,21 \quad (3.46)$$

lo que, de acuerdo con la figura 2 de la referencia [210], nos indica que nos movemos en la zona en que la anchura a media altura del pico de corriente presenta un mínimo. Esto concuerda con las estimaciones hechas a partir de la presión de llenado de la lámpara. El valor de la anchura a media altura que proporciona la gráfica citada es, en unidades normalizadas,  $\tau_{1/2} \approx 2$ . De acuerdo con la expresión (3.2) pasamos a unidades corrientes multiplicando  $\tau$  por  $(LC)^{1/2}$ . Con esto se obtiene  $t_{1/2} \approx 9,3$   $\mu s$ ; valor que concuerda bien con el valor experimental, que es  $\approx 10$   $\mu s$ .

Podemos ahora tratar de comparar algunos de los anteriores resultados con los que proporcionan las teorías más completas de Markiewicz-Emmett y Dishington et al discutidas en el apartado 3.5.2; teorías que asumen la resistencia de la lámpara como no lineal. Los datos experimentales que conocemos de nuestro circuito son los indicados en (3.38) así como la gráfica, registrada en el osciloscopio, de la variación de la corriente con el tiempo. Usaremos en primer lugar los resultados de Markiewicz-Emmett reseñados en la referencia [207] (las gráficas que usaremos corresponden a las soluciones de la ecuación (3.13) obtenidas suponiendo nulo el parámetro  $\beta$ . Más abajo justificaremos que, efectivamente, en nuestro caso  $\beta$  se puede despreciar). A partir de la figura 2 de la referencia [207], que representa la variación de la intensidad normalizada  $I$  en función del tiempo normalizado  $\tau$  para distintos valores de  $\alpha$ , obtenemos que el valor normalizado del periodo de las oscilaciones es  $\tau \approx 6,25$ . Se pasa a unidades corrientes multiplicando  $\tau$  por  $(LC)^{1/2}$ :

$$T_c = \tau (LC)^{1/2} \quad (3.47)$$

Como conocemos  $T_c$ ,  $C$  y  $\tau$ , a partir de (3.47) podemos determinar el valor de  $L$ :

$$L = \frac{1}{C} \left( \frac{T}{\tau} \right)^2 = \frac{1}{8} \left( \frac{30}{6,25} \right)^2 \times 10^{-6} = 2,88 \mu H \quad (3.48)$$

que se compara bien con el valor  $L = 2,72 \mu H$  obtenido suponiendo  $R$  constante.

Para determinar el parámetro de amortiguamiento  $\alpha$  usaremos la expresión (3.14):

$$\alpha = \frac{K_o}{(v_o z_o)^{1/2}} \quad (3.49)$$

donde  $z_o = (L/C)^{1/2}$  y  $K_o$ , que está dada por la expresión (3.10), se escribe para nuestra lámpara concéntrica:

$$K_o = K \cdot \frac{1}{(D^2 - d^2)^{1/2}} \quad (3.50)$$

donde  $D$  es el diámetro interno del tubo que limita exteriormente la lámpara y  $d$  el diámetro externo del tubo láser, concéntrico al anterior, que limita internamente la cavidad de la lámpara. En el caso que estamos considerando  $D = 2,6$  cm,  $d = 0,93$  cm y  $l = 42$  cm. La constante  $K$  viene dada por la expresión (3.8) y, para la presión de 13 mm de Xe que usamos en nuestra lámpara, vale:

$$K = 0,63 \quad (3.51)$$

Con los valores arriba dados se obtiene entonces para nuestra lámpara:

$$K_o = 0,63 \times \frac{42}{(2,6^2 - 0,93^2)^{1/2}} = 10,9 \quad (3.52)$$

Como  $Z_0 = (L/C)^{1/2} = (2,88/8)^{1/2} = 0,6, (3.49)$  proporciona:

$$\alpha = \frac{10,9}{(17300 \times 0,6)^{1/2}} = 0,11 \quad (3.53)$$

valor menor que el 0,21 obtenido considerando la resistencia de la lámpara como constante. Ya indicamos en el apartado 3.5.2 que uno de los efectos de considerar la resistencia de la lámpara como no lineal era la obtención de valores de  $\alpha$  menores que en el caso lineal. Este valor de  $\alpha$  se puede usar ahora para estimar, a partir de la figura 2 de la referencia [207], la anchura a media altura del pico de corriente. Se obtiene así que  $\tau_{1/2} \approx 2$  (unidades normalizadas), que es el mismo valor obtenido anteriormente a partir de las gráficas de Wooding. Este mismo valor se obtiene, asimismo, usando la teoría de tres parámetros de Dishington et al (figura 11 de referencia [208]).

Como ya se indicó en el apartado 3.5.2. la teoría de Markiewicz-Emmett proporciona valores demasiado altos del pico de corriente, siendo este uno de los motivos que condujeron a la elaboración de la teoría de tres parámetros por parte de Dishington y colaboradores. En efecto, la figura 2 de la referencia [207] proporciona un valor estimado del pico de corriente para nuestro caso de  $I_p \approx 0,9$  (unidades normalizadas) que, usando la expresión (3.14) para la conversión a unidades corrientes, se convierte en:

$$i_p = I_p \frac{V_0}{Z_0} = 0,9 \times \frac{17300}{0,6} = 25950 \text{ A}$$

frente al valor de 21900 A que habíamos obtenido cuando consideramos la resistencia de la lámpara como constante. Cuando se utiliza la teoría de tres parámetros de Dishington y colaboradores la estimación para el pico

de corriente es (Figura 10 de referencia [208])  $I_p \approx 0,7$ , que conduce a  $i_p = 20180 \text{ A}$ .

De los resultados obtenidos se comprueba, pues, que la aproximación de considerar la resistencia de la lámpara como constante y aplicar al circuito la teoría RLC proporciona una estimación razonablemente satisfactoria de los principales parámetros del circuito.

La resistencia de la lámpara se puede estimar a partir de la expresión (3.9), con  $K_0$  dada por (3.52) y tomando para  $i$  el valor de la intensidad eficaz (3.45). Se tiene:

$$R_1 = \frac{K_0}{i^{1/2}_{ef}} = \frac{10,9}{(12167)^{1/2}} = 0,099 \text{ } \Omega \quad (3.54)$$

El valor de  $R$  indicado en (3.39) correspondía a la resistencia total,  $R = R_s + R_1$ , donde  $R_s$  es la resistencia del circuito exterior a la lámpara. Se tiene, pues, que:

$$R_s = R - R_1 = 0,25 - 0,099 = 0,15 \text{ } \Omega \quad (3.55)$$

De este modo, el parámetro  $\beta$  introducido en la expresión (3.14), y que tenía en cuenta las pérdidas resistivas del circuito, vale en este caso:

$$\beta = \frac{R_s}{Z_0} = \frac{0,15}{0,6} = 0,25 \quad (3.56)$$

Vimos en el apartado 3.5.2 que el efecto de  $\beta$  sobre las soluciones de la ecuación (3.13) era menor que un 5% cuando  $\beta \leq 0,6$ . Esto justifica el uso que hemos hecho de las gráficas de las referencias [207] y [208], todas

las cuáles están obtenidas suponiendo  $\beta = 0$ .

Cuando la capacidad de los condensadores se aumentó a  $18 \mu F$ , y con un voltaje inicial en los mismos de  $V_0 = 9900 V$ , el periodo  $T_C$  de la oscilación de la corriente aumentó a  $56 \mu s$  y la razón entre picos consecutivos de corriente fue  $I_n/I_{n+1} = 10,5$ . Aplicando (3.36) y (3.37) se tiene en este caso:

$$\delta = 2,35, \quad L = 3,87 \mu H, \quad R = 0,33 \Omega \quad (3.57)$$

siendo ahora  $R_C = 0,93 \Omega$  y  $\alpha = 0,35$ . La aplicación de (3.40), (3.41) y (3.44) lleva entonces a los valores:

$$t_p = 10,74 \mu s, \quad i_p = 13477 A, \quad i_{ef} = 6854 A \quad (3.58)$$

Procediendo como en el caso anterior se comprueba nuevamente que estos resultados se comparan bien con las estimaciones obtenidas a partir de las teorías de Markiewicz-Emmett y de Dishington y colaboradores.

Aplicando (3.54) se obtiene la resistencia de la lámpara en este caso:

$$R_1 = \frac{10,9}{(6854)^{1/2}} = 0,13 \Omega \quad (3.59)$$

de modo que

$$R_s = R - R_1 = 0,24 \Omega$$

En el apartado 3.2, cuando expusimos las características espectroscópicas del destello, indicamos que el hecho de que el mismo tuviera dos picos era debido a que el circuito de la lámpara no estaba críticamente amortiguado. Podríamos tratar, pues, de eliminar el segundo pico

acercando el régimen del circuito al crítico. Un procedimiento para con seguir esto consistiría en aumentar la presión del gas de llenado de la lámpara de destello, o sea aumentar el parámetro  $\alpha$  de la lámpara definido por la expresión (3.49). Este procedimiento no parece muy conveniente puesto que nos alejaría de la zona de presiones (de valores de  $\alpha$ ) para las que la radiación de bombeo en la zona ultravioleta del espectro presenta un mínimo tiempo de subida y un máximo de intensidad de salida, como ya hemos discutido anteriormente. Un método alternativo consistiría en aumentar la resistencia del circuito externo a la lámpara, lo que equi vale a aumentar el valor del parámetro  $\beta$  del circuito manteniendo el  $\alpha$  inalterado (ver la expresión (3.14)). Esto conduciría, de acuerdo con la discusión llevada a cabo en el apartado 3.5.2, a una disminución del valor de  $\alpha$  para el cual el circuito se convierte en crítico. Aumentando lo suficiente la resistencia externa a la lámpara el parámetro  $\beta$  alcanza un valor tal que el circuito se convierte en crítico para el valor actual de  $\alpha$ . La contrapartida en éste procedimiento consiste en un incremento de las pérdidas resistivas, lo que podría hacer inviable su utilización si motiva una reducción notable de la intensidad de salida de la radiación de bombeo.

El segundo de los procedimientos indicados fue el utilizado por nosotros para convertir en crítico el circuito. Trabajamos en primer lugar con una capacidad de  $18 \mu F$  en el circuito puesto que la resistencia externa que es preciso añadir en este caso para alcanzar el régimen crítico es menor que si la capacidad fuese de  $8 \mu F$ , con lo que las pérdidas resistivas también serán menores. De acuerdo con (3.57) la resistencia total del circuito es  $R = 0,33 \Omega$  y la resistencia crítica es

$R_c = 0,93 \, \Omega$  . Para convertir el régimen del circuito en crítico tendremos, pues, que añadir una resistencia de aproximadamente  $0,6 \, \Omega$  . Utilizaremos a este fin hilo de Khantal de 1 mm de diámetro (densidad:  $7,25 \, \text{g/cm}^3$ ; temperatura de fusión:  $1300^\circ \text{C}$ ) cuya resistencia es de  $2 \, \Omega/\text{m}$ . Con 25 cm de dicho hilo conseguiríamos, pues, una resistencia de  $0,5 \, \Omega$  , pero, teniendo en cuenta el valor de la intensidad eficaz (3.58), el calentamiento del hilo por efecto Joule sería excesivo. A fin de reducir a la mitad el valor de la intensidad de corriente que atraviesa el hilo disponemos dos hilos de Khantal de 50 cm de longitud cada uno en paralelo. La resistencia equivalente que añadimos así al circuito es de  $0,55 \, \Omega$  , por lo que la resistencia total del circuito pasa a ser  $0,33 + 0,55 = 0,88 \, \Omega$  , valor próximo al crítico. En estas condiciones el comportamiento experimental de la corriente es el corresponde al amortiguamiento crítico y en el destello ha desaparecido el segundo pico (figura 20-c). Ahora bien, la intensidad del pico del destello se ha reducido asimismo a aproximadamente la mitad, y deja de obtenerse emisión láser en nuestro sistema con  $V=9900 \, \text{V}$ , siendo necesario aumentar el voltaje inicial de los condensadores hasta  $17300 \, \text{V}$  para obtener nuevamente emisión láser. Este hecho muestra claramente que la energía disipada en la resistencia extra es excesiva para un adecuado rendimiento del sistema. Este punto se discutirá más detalladamente en el apartado 4.3.

Cuando la capacidad del sistema se reduce a  $8 \, \mu\text{F}$  la resistencia extra que es preciso añadir al circuito para alcanzar el régimen crítico es todavía mayor (habría que añadir  $0,92 \, \Omega$  , expresión (3.39)) y la intensidad eficaz (expresión (3.45)) es casi el doble que en el caso de  $18 \, \mu\text{F}$ . En estas condiciones, las pérdidas resistivas hacen inviable el uso de es

te procedimiento en nuestro sistema. En cualquier caso, la presencia del segundo máximo del destello no afecta a la emisión láser cuando el medio activo que se emplea es  $\text{CH}_3\text{I}$ , por cuanto que la emisión siempre empieza durante la subida inicial del destello y termina, en todos los casos, antes de que comience la subida correspondiente al segundo pico del destello.

### 3.5.5. Características espectrales y emisión ultravioleta de las lámparas empleadas

Vamos a determinar en primer lugar la temperatura efectiva de cuerpo negro correspondiente a nuestra lámpara de destello en las condiciones descritas en el apartado anterior. A estos efectos usaremos la expresión (3.32) convenientemente modificada para poderla aplicar a nuestra lámpara concéntrica. Llamando  $r_1$  y  $r_2$  al mayor y menor, respectivamente, de los radios de la sección transversal de nuestra lámpara (y, por tanto,  $r_1 = D/2 = 2,6/2 = 1,3$  cm;  $r_2 = d/2 = 0,93/2 = 0,46$  cm) la expresión (3.31) se escribe ahora:

$$(2\pi r_1 L) a T^4 + (2\pi r_2 L) a T^4 = \pi (r_1^2 - r_2^2) L n j^2$$

de donde:

$$T = 603 (j \sqrt{r_1 - r_2})^{4/11} \quad (3.60)$$

Consideremos primeramente el caso en que la capacidad de los condensadores en el circuito de descarga es de 8  $\mu\text{F}$  y el voltaje inicial sobre los mismos es de 17300 V. Como para obtener (3.60) hemos igualado la energía total de cuerpo negro radiada por el plasma con el calenta



miento óhmico de todo el volumen, la  $j$  que hay que usar en (3.60) es el valor eficaz. Usando entonces el valor (3.45), se tiene:

$$j_{ef} = \frac{i_{ef}}{\pi(r_1^2 - r_2^2)} = \frac{12167}{4,64} = 2619,6 \text{ A/cm}^2$$

Con esto,

$$T = 603 \left[ 2619,6 \sqrt{1,3-0,46} \right]^{4/11} = 10222 \text{ °K} \quad (3.61)$$

Usando la ley de Wien,

$$\lambda_{max} T = w \quad (w = 0,289779 \text{ cm.°K}) \quad (3.62)$$

obtenemos la longitud de onda correspondiente al máximo de energía emitida:

$$\lambda_{max} = 283,5 \text{ nm}$$

Vimos en el apartado 3.5.3 que la máxima eficiencia para la emisión de fotones en la banda espectral 250-300 nm se obtenía para una temperatura efectiva de cuerpo negro del plasma de 18700 °K. Para que la temperatura de cuerpo negro de nuestra lámpara aumente desde el valor (3.61) hacia el óptimo tendremos que aumentar  $j_{ef}$ , lo que supone aumentar  $V_o$ . Como el máximo valor de  $V_o$  que podemos obtener con nuestro sistema es de 19200 V, nos moveremos en una zona de temperaturas alejada de la óptima.

Cuando la capacidad de los condensadores se aumentó a 18  $\mu F$  y el voltaje inicial sobre los mismos fue de  $V_o = 9900$  V el valor eficaz de la intensidad es el dado por (3.58). Utilizando (3.60) en este caso se obtiene la temperatura de cuerpo negro:

$$T = 8300 \text{ °K}$$

Tal como se indicó en el apartado 3.5.3, la forma del destello se modifica con la longitud de onda, de modo que, por ejemplo, su longitud en el ultravioleta es menor que en la parte visible del espectro. Previsiblemente también se modificará con la longitud de onda la relación entre los dos picos que aparecen en el destello (figura 20). Se procedió entonces a registrar experimentalmente la forma del destello de la lámpara a diferentes longitudes de onda. El montaje experimental utilizado se esquematiza en figura 29. Según hemos descrito en el apartado 3.2 la lámpara de destello utilizada por nosotros es concéntrica al tubo láser, limitada exteriormente por un tubo de Pyrex e interiormente por el tubo láser, que es de cuarzo Spectrosil. Como queremos registrar la forma del destello a longitudes de onda correspondientes a la parte ultravioleta del espectro no podemos utilizar la radiación que sale a través del tubo exterior a la lámpara, puesto que el Pyrex no permite el paso de longitudes de onda por debajo de aproximadamente 300 nm (una lámina de Pyrex de 2 mm de espesor deja pasar a 297 nm el 10% de la luz incidente sobre la misma [201]). Lo que hacemos entonces es, tal como se indica en el esquema de figura 29, focalizar, por medio de un espejo recubierto de oro de 2 m de radio de curvatura, la fracción de radiación emitida por la lámpara a través del tubo interno de cuarzo que sale según el eje del tubo láser. A fin de aminorar las pérdidas se han eliminado las ventanas que cierran usualmente el tubo láser a ambos lados, de modo que el tubo está ahora abierto por sus extremos.

Para seleccionar la longitud de onda se ha utilizado un monocromador de alta resolución (Bausch and Lomb) provisto de una red de difracción de 1350 líneas/mm e intensificada a 300 nm. Se utilizaron

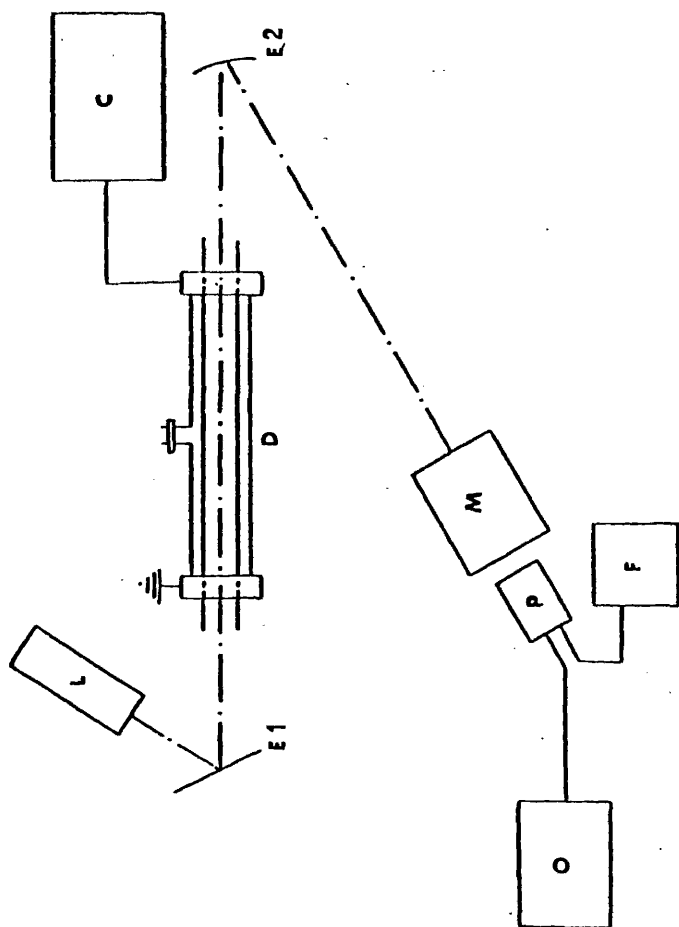


Figura 29.- Montaje experimental para la determinación de destellos a distintas longitudes de onda.

L, láser de He-Ne; E1, espejo plano con superficie externa de oro; E2, espejo curvo con superficie externa de oro; D, lámpara de destello M, monocromador; P, fotomultiplicador; F, fuente de alimentación del fotomultiplicador; O, osciloscopio.

rendijas de 3,6 mm a la entrada y de 2,0 mm a la salida. En estas condiciones la radiación transmitida tiene una anchura de banda a media altura de 10 nm. El monocromador se sitúa de modo que la rendija de entrada está situada, aproximadamente, en la posición del foco del espejo de oro. Un láser auxiliar de He-Ne (figura 29) nos permite asegurarnos de que la radiación que sale a lo largo del eje del tubo láser es focalizado por el espejo de oro sobre la rendija de entrada del monocromador.

A la salida del monocromador se sitúa un fotomultiplicador (RCA 1P28) que va alimentado a 800 V y está unido a una fuente de alta tensión estabilizada (Farnell, EHT-1). En estas condiciones el fotomultiplicador trabaja en la zona lineal [22]. El tiempo de subida del pulso en el ánodo es de  $\leq 2$  ns y la respuesta espectral cubre el rango de 200 a 650 nm, ocurriendo la máxima respuesta a 340 nm (a 200 nm la respuesta del fotomultiplicador es todavía el 62% de la respuesta máxima; a 650 nm la respuesta es el 1,6% de la máxima). La señal proporcionada por el fotomultiplicador se visualiza y almacena en el osciloscopio digital de memoria Nicolet 1090 A descrito en el apartado 3.3 y se dibuja en papel por medio del registro Yokogawa 3046 descrito en el mismo apartado.

La capacidad de los condensadores del circuito de la lámpara fue de 10  $\mu$ F. Se registraron los destellos a las longitudes de onda de 200, 250, 400 y 638 nm y a las energías de descarga de 500, 820 y 1080 J. Cuando se realizaron los experimentos a las longitudes de onda de 400 y 638 nm se situó a la entrada del monocromador una lámina de vidrio que no permite el paso de longitudes de onda por debajo de 320 nm a fin de impedir el paso en segundo orden de las longitudes de onda de 200 y 319

nm, respectivamente, lo que podría distorsionar los resultados. (Si llamamos  $\theta_0$  al ángulo que forma el haz incidente en la red de difracción con la normal a la cara plana de la red y  $\theta$  al ángulo que forma con dicha normal el haz una vez reflejado, se tiene la relación [7-c] :

$$\text{sen } \theta - \text{sen } \theta_0 = \frac{m\lambda}{d} \quad (m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots) \quad (3.63)$$

donde  $d$  es el espaciado entre las líneas de la red,  $\lambda$  la longitud de onda del haz incidente en la misma y  $m$  un número entero que determina el orden transmitido. La posición de la red de difracción con respecto a la rendija de salida del monocromador es tal que a través de ésta sale el primer orden ( $m=1$ ) de la longitud de onda escogida. No obstante, se comprueba inmediatamente de (3.63) que en la misma posición también salen por la rendija el segundo orden de la longitud de onda  $\lambda/2$ , el tercer orden de la  $\lambda/3$ , etc., puesto que  $2m \lambda/2 = 3m \lambda/3 = \dots = m\lambda$ . En estas condiciones, si ajustamos el monocromador para que permita el paso de la longitud de onda de 400 nm, también permite el paso del segundo orden correspondiente a 200 nm, longitud de onda a la que todavía es sensible el fotomultiplicador. Lo mismo ocurre con 638 y 319 nm).

En las figuras 30-33 se comparan los destellos obtenidos para cada longitud de onda a las tres energías de descarga utilizadas. De la comparación entre las distintas figuras se comprueba inmediatamente:

(i) el tiempo de subida del destello (tiempo que tarda en alcanzar el primer máximo) se hace menor al disminuir la longitud de onda a que se detecta el pulso luminoso; (ii) la anchura a media altura del primer pico del destello disminuye al hacerse menor la longitud de onda; (iii) la razón entre las alturas de los dos picos del destello se hace tanto mayor

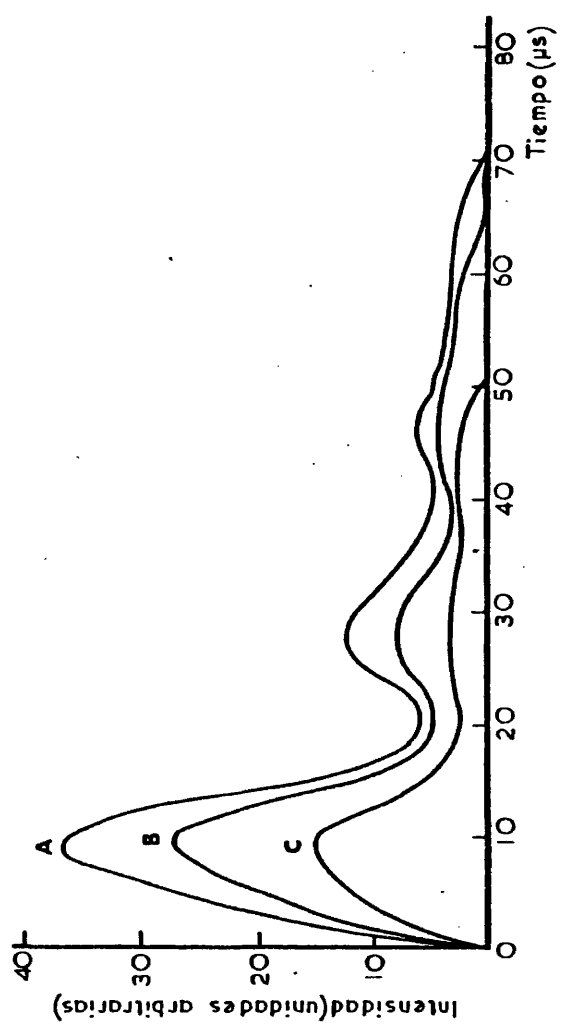


Figura 30.- Destellos registrados a  $\lambda = 200 \text{ nm}$ . Energías de descarga: A, 1070 J; B, 810 J; C, 500 J.

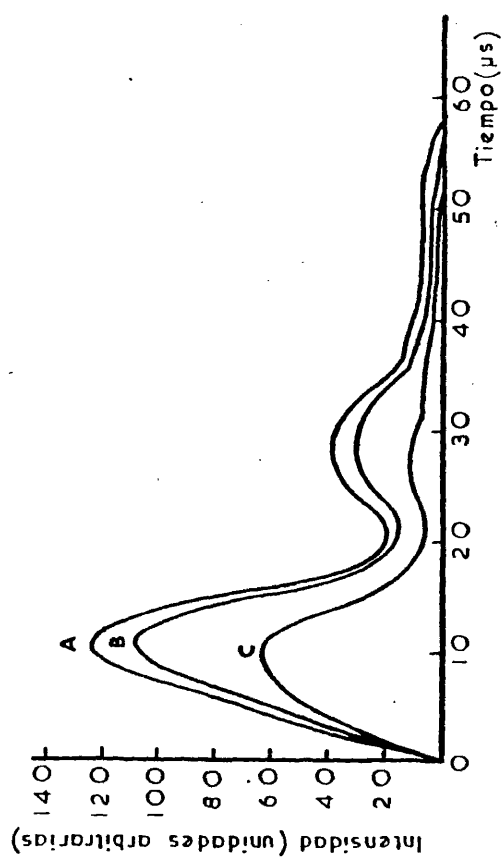


Figura 31.- Destellos registrados a  $\lambda = 250$  nm. Energías de descarga: A, 1070 J; B, 810 J; C, 500 J.

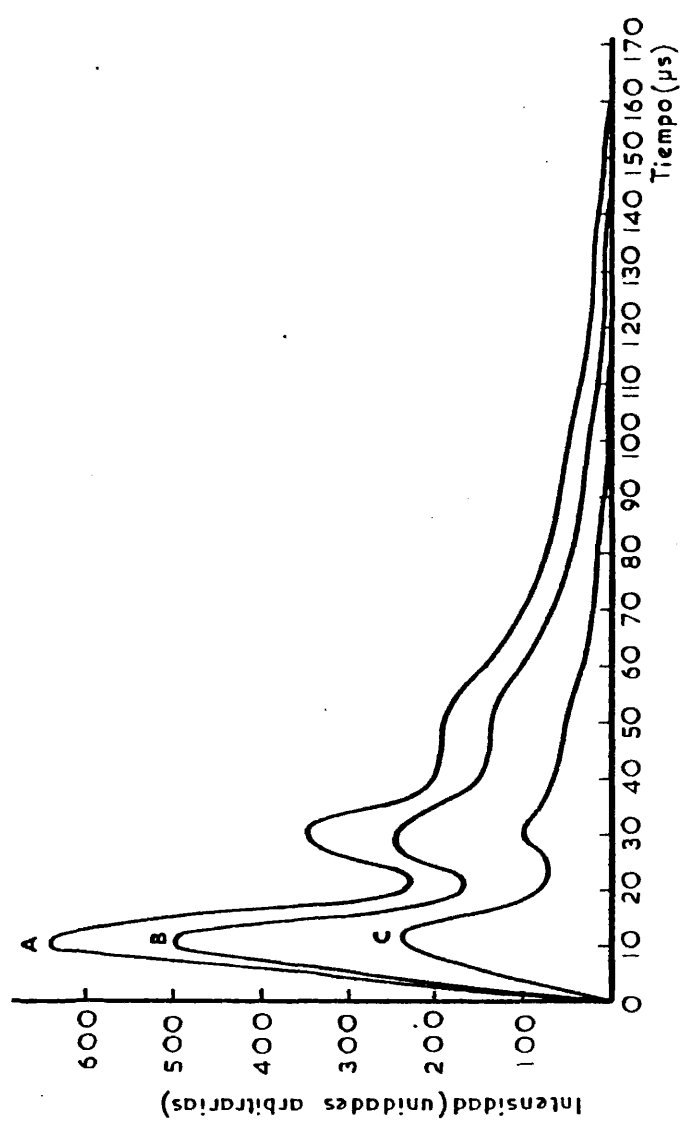


Figura 32.- Destellos registrados a  $\lambda = 400$  nm. Energías de descarga: A, 1070 J; B, 810 J; 500 J.



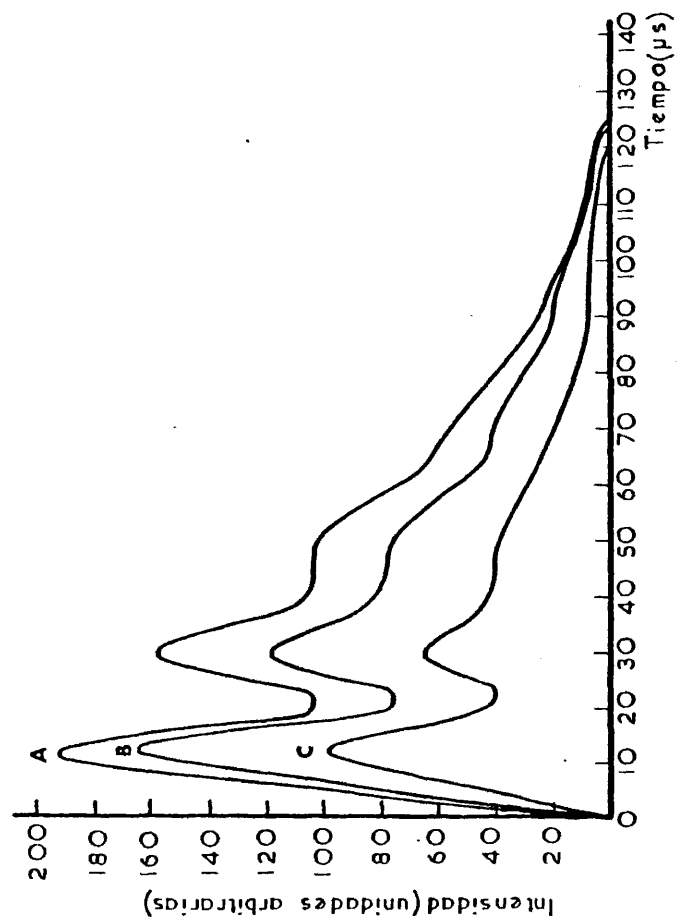


Figura 33.- Destellos registrados a  $\lambda = 638$  nm. Energías de descarga: A, 1070J; B, 810J; C, 500J.

cuanto menor es la longitud de onda y, a una longitud de onda determinada, dicha razón disminuye al aumentar la energía de descarga; (iv) la duración total del pulso luminoso es mayor en un factor 2 en el visible que en la parte ultravioleta del espectro.

### 3.6. FUNCIONAMIENTO DEL SISTEMA LASER

Para el funcionamiento de un sistema como el descrito hasta aquí es necesario realizar una serie de operaciones, como son: alineación óptica, introducción de los reactivos en el tubo de reacción, excitación de la mezcla mediante un destello, detección del pulso láser y su análisis espectral. Algunas de estas operaciones ya se han descrito. El resto las detallamos a continuación.

#### 3.6.1. Alineamiento de la cavidad

En el apartado 1.2.3 hemos hecho hincapié en la importancia de una correcta alineación de la cavidad óptica y hemos analizado, asimismo, las tolerancias al alineamiento de las diversas configuraciones del resonador. Vamos a describir a continuación el procedimiento experimental desarrollado para conseguir una correcta alineación de nuestra cavidad (figura 34). Se utiliza como herramienta auxiliar un pequeño láser comercial de He-Ne, L, (1 mw, polarizado, Hughes) así como un cubreobjetos de microscopio C montado sobre un soporte que se puede girar en torno a los ejes horizontales y vertical. El haz luminoso procedente de L incide sobre el cubreobjetos de modo que la fracción del haz reflejado en el mismo vaya hacia el espejo M2, donde se refleja nuevamente dirigiéndose ha-

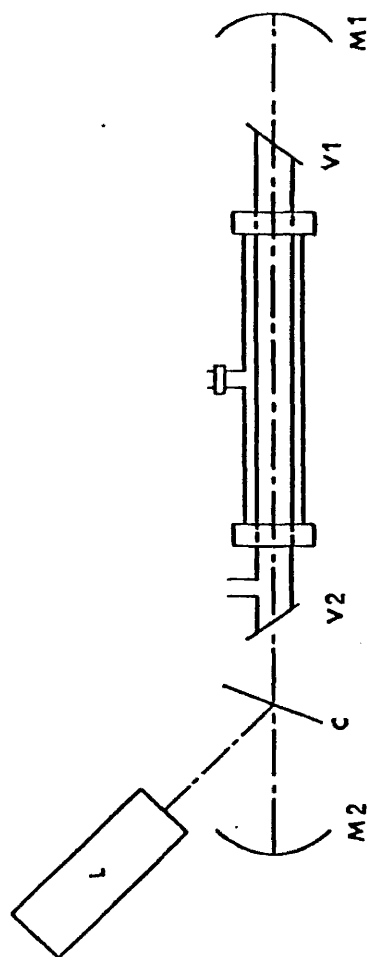


Figura 34.- Esquema del sistema de alineación: L, láser de He-Ne; M1, M2, espejos curvos con superficies externas de oro; C, cubreobjetos de microscopio; V1, V2, ventanillas al ángulo de Brewster.

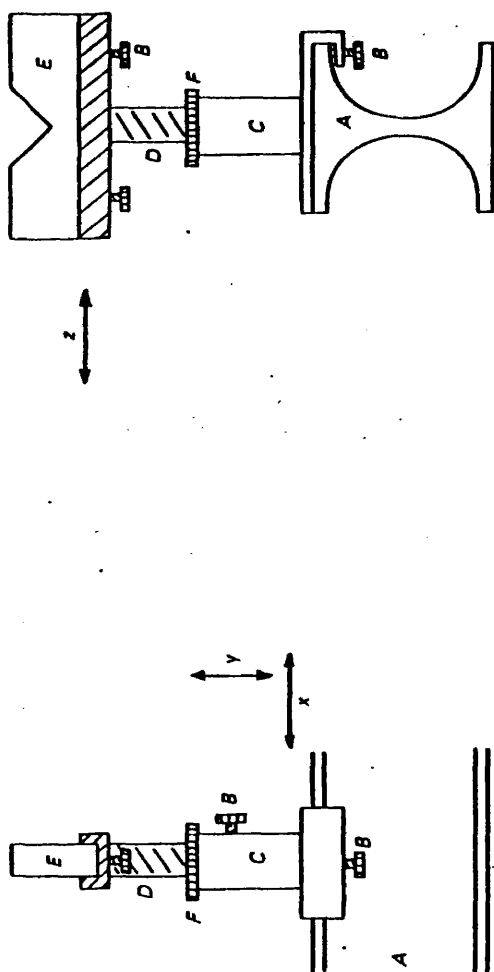


Figura 35.- Frente y perfil de uno de los soportes de la lámpara de destello y tubo láser: A, viga de hierro, B, tornillo de sujeción; C, soporte de acrílico; D, elemento con rosca que se introduce más o menos en el soporte C mediante el giro de la pieza F; E, soporte de la lámpara hecho de acrílico; F, pieza roscada con el elemento D.

cia la posición del espejo M1 a través de C y del interior del tubo láser. El espejo M1 se dispone de modo que el haz reflejado retorne nuevamente a M2 a través del interior del tubo láser y de C, y así sucesivamente. Mientras los espejos no estén correctamente alineados aparecerán en C (así como en los espejos y en las ventanas V1 y V2) varias manchas luminosas: correspondientes unas a los rayos luminosos que van de M2 a M1 y otras a los rayos reflejados desde M1 hacia M2. Como los soportes en que van montados los espejos permiten movimientos independientes y altamente precisos en torno a los ejes vertical y horizontal, se ajusta la posición de los espejos hasta que todas las manchas luminosas coinciden en el mismo punto. En el curso de la operación puede ser necesario ajustar la posición de C a fin de que el haz luminoso se refleje en la zona central de cada espejo. Es conveniente comenzar por ajustar M2 manteniendo tapado el espejo M1, asegurándonos así de que el haz reflejado en M2 alcanza la posición donde está situado M1. Una vez conseguido esto se destapa M1 y se ajusta, a su vez, su inclinación, a fin de que el haz reflejado en el mismo retorne nuevamente a M2.

Cuando el tubo láser es muy fino puede ser difícil conseguir que el haz luminoso lo atraviese sin reflejarse en sus paredes. A fin de facilitar la operación, el tubo láser (o el sistema tubo láser-lámpara concéntrica al mismo) va montado sobre soportes (figura 35) que permiten su movimiento tanto en un plano horizontal como en uno vertical, o en ambos a la vez. Puede ser entonces conveniente proceder al alineado de la cavidad con el tubo láser fuera de la misma. Una vez que se ha conseguido el alineado por el procedimiento indicado arriba, se introduce el tubo en la cavidad y, por medio de los soportes sobre los que va montado,

se ajusta su posición de modo que el haz luminoso lo atraviere sin tocar en sus paredes.

De acuerdo con la discusión sostenida en el apartado 1.2.4 es conveniente que las ventanas que cierran a ambos lados el tubo láser tengan sus planos situados de modo que el plano formado por el haz incidente a la ventana y la normal a la misma en el punto de incidencia (plano de incidencia) sea el mismo para ambas. Llamemos eje  $z$  del plano de la ventana al determinado unívocamente del modo siguiente. Si  $\pi$  es el plano de incidencia, el eje  $z$  del plano de la ventana es la recta de dicho plano perpendicular a  $\pi$  en el punto de incidencia. Con esta definición el plano de incidencia es común para ambas ventanas si los ejes  $z$  de las mismas son paralelos entre sí. Cuando esto ocurre, y si tomamos como plano  $\pi$  el del papel, el eje  $z$  de cada ventana será perpendicular al plano del papel en los puntos  $A_1$  y  $A_2$ , respectivamente (figura 36), y ambas ventanas tendrán sus planos normales con respecto al plano del papel. En estas condiciones, los rayos reflejados  $r_1$  y  $r_2$  se cortarán en el punto  $P$ . Si las ventanas no tuviesen sus ejes  $z$  perfectamente paralelos los planos de incidencia a ambas, que llamaremos  $\pi_1$  y  $\pi_2$ , formarían un cierto ángulo entre sí, y los rayos reflejados  $r_1$  y  $r_2$  no se cortarían en  $P$ , sino que simplemente se cruzarían. Este hecho proporciona un método experimental simple para conseguir que los ejes  $z$  de ambas ventanas sean paralelos entre sí y los planos de incidencia  $\pi_1$  y  $\pi_2$  coincidan. Una vez alineada la cavidad, y con el tubo láser situado en la misma, se comprueba si  $r_1$  y  $r_2$  se cortan o se cruzan en  $P$ . En el caso en que se crucen no hay más que ir rotando suavemente el terminal al que va unida una de las ventanas con respecto al de la otra hasta conseguir que

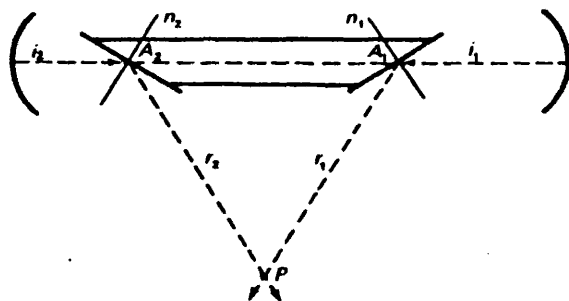


Figura 36

los haces reflejados se corten en el punto P.

### 3.6.2. Purificación, preparación e introducción del reactivo en el tubo de reacción

El  $\text{CH}_3\text{I}$  (May and Baker L.T.D., p.e.  $42^\circ\text{C}$ ) fue purificado previamente a su uso mediante sucesivas destilaciones en la línea de vacío. En cada destilación se recogieron solamente las fracciones centrales, desechándose el resto. El  $\text{CH}_3\text{I}$  se utilizó puro y diluido en Ar,  $\text{CO}_2$  y  $\text{SF}_6$  en diferentes proporciones. El Ar (N39, SEO),  $\text{CO}_2$  (N49, SEO) y  $\text{SF}_6$  (N26, SEO) fueron usados sin ulterior purificación.

La preparación de mezclas gaseosas del  $\text{CH}_3\text{I}$  con los diferentes gases se llevó a cabo del modo siguiente. En un globo con cierre de teflón (Young Acton) y toma de condensación de gases, al que previamente se mantuvo durante 15 minutos a la presión de  $10^{-4}$  Torr unido a la línea de vacío, se destila  $\text{CH}_3\text{I}$  purificado hasta la presión deseada, condensándolo inmediatamente después a  $72^\circ\text{K}$  con la ayuda de un vaso Dewar conteniendo nitrógeno líquido. Una vez retirado el vaso Dewar se in-

introduce el gas diluyente hasta que la presión alcanza el valor fijado, momento en el que se cierra la llave de teflón y se calienta la zona donde aún está solidificado el  $\text{CH}_3\text{I}$  hasta que todo él se vaporiza, obteniéndose así la mezcla de  $\text{CH}_3\text{I}$  y gas diluyente en la proporción requerida. Cuando la sustancia de trabajo se utilizó sola, sin mezclarla con gases inertes, también se almacenó en un globo una vez purificada. El globo de Pyrex se protege mediante papel de aluminio para evitar algún posible efecto de la luz sobre la sustancia de trabajo. Las mezclas de gases se dejaron reposar 24 horas antes de su uso, siendo renovadas en cualquier caso al cabo de otras 48 horas. Analogamente, cuando el  $\text{CH}_3\text{I}$  se utilizó solo se volvió a purificar al cabo de 48 horas de almacenamiento en el globo.

La introducción de la sustancia de trabajo purificada, sola o mezclada con otro gas, en el tubo de reacción se lleva a cabo con la ayuda de la línea de vacío, la cual se halla unida al tubo de reacción mediante un codo de vidrio Pyrex de igual sección que el resto de la línea de vacío y cuyos extremos son sendas rótulas sin grasa (Rotulex). Previo a la introducción del reactivo, el tubo de reacción es sometido a una presión menor de  $10^{-4}$  Torr durante 15 minutos. Una vez que en el interior del tubo láser se alcanza la presión adecuada de reactivos, se aísla éste cerrando la llave de teflón de que está dotado.

La presión de trabajo en el tubo láser fue de 6 Torr en todos los experimentos (cuando el  $\text{CH}_3\text{I}$  se utiliza mezclado con diversos gases se entiende que los 6 Torr corresponden a la presión parcial del yoduro de metilo), a no ser que se diga explícitamente lo contrario. Tal como



se indicó en el apartado 2.2.5.1, la presión óptima de trabajo en cuanto a la obtención de un máximo de energía de salida es de  $\sim 24$  Torr para el  $\text{CH}_3\text{I}$ . La utilización de una presión próxima a la óptima mejoraría, pues, la emisión láser, por este mismo hecho convierte a la señal en menos sensible a las condiciones de la operación láser y podría enmascarar la actuación de ciertos mecanismos sobre la emisión.

### 3.6.3. Puesta en funcionamiento del sistema. Detección y análisis de la emisión láser

La fotólisis del reactivo contenido en el tubo de reacción se llevó a cabo mediante el sistema descrito en el apartado 3.2 y la detección de la emisión láser se realizó por medio de los detectores de infrarrojo descritos en el apartado 3.3. En las pruebas de funcionamiento del sistema usamos un tubo láser de 14 mm de diámetro interno cerrado a ambos lados por ventanas de zafiro (apartado 3.1). Se fotolizaron mezclas de  $\text{CH}_3\text{I}$  y Ar en la proporción de 1:4 a la energía de descarga de 882 J (capacidad del sistema de descarga: 18  $\mu\text{F}$ ), tanto con el dispositivo de lámpara de destello paralela al tubo láser como con el de lámpara concéntrica (apartado 3.2). Señales láser típicas se muestran en la figura 37.

De acuerdo con lo expuesto en el apartado 1.2.1 es interesante, a efectos de obtener una buena calidad (coherencia espacial) del haz láser, el que la oscilación láser ocurra en el modo fundamental  $\text{TEM}_{00}$ . Es razonable esperar que cuando usamos la geometría de lámpara concéntrica al tubo láser la oscilación tenga lugar en dicho modo fundamental, y esto por varias razones. En primer lugar, dicha geometría favorece la pro

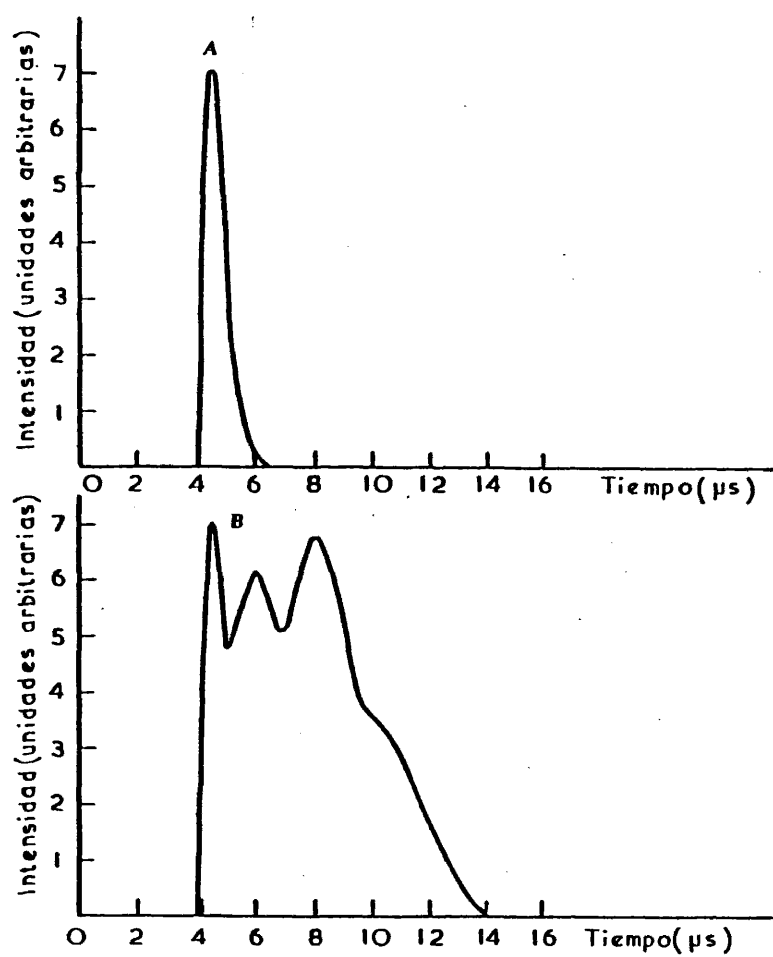


Figura 37.- Emisiones láser a 882 J de energía de descarga (capacidad del sistema de descarga: 18 μF) para una mezcla CH<sub>3</sub>I/Ar 1:4: A, lámpara concéntrica al tubo láser; B, lámpara dispuesta paralelamente al tubo láser.

ducción de una distribución homogénea de ganancia en el medio (una distribución inhomogénea como la que origina una lámpara dispuesta en paralelo al tubo láser, causa la aparición de modos transversales en la radiación láser, tal como se señaló en el apartado 3.2). En segundo lugar, en un resonador del tipo utilizado por nosotros la ganancia del modo  $TEM_{00}$  es aproximadamente 25 veces mayor que la de los modos más altos (apartado 1.2.2). Teniendo en cuenta que nuestro sistema trabaja con ganancias próximas a la ganancia umbral de la cavidad (apartado 4.4.2.2) parece razonable el pensar que los modos más altos que el fundamental no alcanzarán, ni en el caso más favorable, ganancia suficiente para compensar las pérdidas y poder oscilar.

A efectos de confirmar la validez del anterior razonamiento y comprobar que, efectivamente, el único modo que oscila en nuestro sistema es el  $TEM_{00}$ , se introdujeron en la cavidad diafragmas de diversos diámetros. Como al aumentar el orden de los modos también aumenta el diámetro de los mismos (apartado 1.2.1) la presencia del diafragma impediría la posible oscilación de los modos más altos que el fundamental. Esto se deberá traducir (si oscilan más modos que el  $TEM_{00}$ ) en una modificación de la señal láser, variando su intensidad y su forma (comportamiento temporal). Teniendo en cuenta que nuestros cálculos indican que, para nuestra cavidad, el diámetro del modo  $TEM_{00}$  en la posición de los espejos es de 1,44 mm (apartado 1.2.1), introducimos en la cavidad, y en las proximidades de uno de los espejos, diafragmas de 3;2,5 ;2 y 1,5 mm de diámetro respectivamente, en pruebas sucesivas. Con diafragmas de diámetros 3;2,5 y 2 mm se obtuvo emisión láser idéntica a la registrada en ausencia de diafragma. Cuando el diámetro del diafragma fue de 1,5 mm no se ob

tuvo emisión láser. Esto puede ser debido a que en este caso el diámetro del diafragma es próximo al de el modo fundamental, de modo que cualquier ligera desviación en la alineación, tolerada en ausencia del diafragma, puede ser ahora suficiente para impedir incluso la oscilación en el modo fundamental  $TEM_{00}$ .

#### IV. ESTUDIO DE LA EMISION LASER UTILIZANDO CH<sub>3</sub>I COMO MEDIO ACTIVO

##### 4.1. INFLUENCIA DE LA VELOCIDAD DE BOMBEO

En esta sección vamos a proceder al estudio del efecto que sobre la emisión láser ejerce la modificación de la velocidad de bombeo a una energía de descarga determinada. A este fin, procederemos variando sistemáticamente el tiempo de subida del destello (tiempo que tarda el destello en alcanzar su valor máximo). Estos experimentos nos pueden proporcionar información acerca de los mecanismos que intervienen en la obtención de inversión de población y en la terminación de la emisión láser. La formación de inversión de población depende por un lado del bombeo, que produce iodo excitado ( $I^*$ ) por descomposición del sustrato  $CH_3I$ . Por otro lado, en la fotólisis del  $CH_3I$  se forman, además del  $I^*$ , otros productos que van a influir sobre la inversión de población y la emisión láser, generalmente en el sentido de disminuir la primera e interrumpir la última. La acción de estos productos puede depender poderosamente de la velocidad con que se suministra la energía al medio láser. Un pulso lento disminuirá la velocidad de formación de inversión de población, con lo que es de esperar que la emisión láser también se retrase, lo que daría tiempo a los productos de fotólisis a dejar sentir su acción con más efectividad.

##### 4.1.1. Dispositivo experimental

El sistema de bombeo empleado es el descrito en el apartado 3.2, con lámpara concéntrica al tubo láser y capacidad total del siste-

ma de 18  $\mu\text{F}$ . Las características del destello fueron descritas en el apartado 3.2 (anchura a media altura, 21  $\mu\text{s}$ ; tiempo de subida, 18  $\mu\text{s}$ ) y las del circuito reseñadas en el apartado 3.5.4. La célula láser usada tiene 0,75 cm de diámetro interno y una longitud total de 67 cm. Las ventanas utilizadas para cerrar a ambos lados la célula láser fueron las de zafiro (apartado 3.1). La longitud iluminada (longitud de la lámpara de destello) fué de 42 cm. Las pérdidas de la cavidad pasiva fueron en estas condiciones del  $(22 \pm 1)\%$  (apartado 4.4.2.1). Se utilizaron energías de descarga de 1080 J y 1692 J.

Se puede aumentar el tiempo de subida de destello (y, por tanto, su anchura a media altura) incrementando la autoinducción L del circuito. A estos efectos, se construyeron carretes con distinto número de espiras que se intercalaron en el circuito. La autoinducción L de un carrete viene dada, aproximadamente, por  $[221-b]$  :

**TABLA I**  
Características de los destellos

	Caso A <sup>a)</sup> Energía de des- carga: 1080 J			Caso B <sup>a)</sup> Energía de des- carga: 1692 J	
	A1	A2	A3	B1	B2
Tiempo de subida ( $\mu\text{s}$ )	18	22	27	28	41
Anchura a media altura ( $\mu\text{s}$ )	21	24	27	29	42
Intensidad máxima <sup>b)</sup> (voltios)	0,76	0,59	0,53	0,71	0,58

a) Los subcasos corresponden a diferentes características del destello obtenidos intercalando en el circuito de la lámpara adecuadas autoinducciones (ver texto): A1, ningún carrete extra; A2, 1 carrete de 8 espiras; A3, 2 carretes de 8 espiras; B1, 2 carretes de 8 espiras; B2, 2 carretes de 8 espiras y 1 de 16 espiras.

b) Tal como se registra en el osciloscopio.

$$L = \mu_0 \frac{N^2 S}{l} \quad (4.1)$$

donde  $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7}$  Newton/Amp<sup>2</sup> es la permeabilidad en el espacio vacío, N es el número de espiras, l la longitud del carrete y S la sección transversal del mismo. Usamos un arrollamiento de hilo de cobre de 3 mm de diámetro sobre un núcleo de cartón de 3,1 cm de radio. Con una longitud de carrete de 5 cm para obtener un valor de L del orden del de nuestro circuito (3,87  $\mu$ H) harían falta, de acuerdo con (4.1), un total de 8 espiras. Construimos entonces carretes de 8 y de 16 espiras, que introducimos en el circuito bien de uno en uno o bien en serie, en diversas combinaciones. Se obtuvieron de esta manera los valores de tiempo de subida y anchura a media altura reseñados en la tabla I. La anchura a media altura corresponde al primer máximo del destello, tal como se explicó en el apartado 3.2. Destellos típicos correspondientes a las distintas condiciones reseñadas en la tabla I se muestran en las figuras 38-41. Se aprecia claramente en dichas figuras como, según vamos aumentando la L del circuito nos vamos alejando del régimen crítico, aumentando la oscilación del circuito.

En los experimentos se utilizaron mezclas de CH<sub>3</sub>I y Ar en la proporción 1:4. Se utiliza el Argon como diluyente a fin de evitar el rápido calentamiento del CH<sub>3</sub>I durante la fotólisis, lo que podría llevar al gas a una temperatura donde el proceso fuese controlado por la disociación térmica de la molécula (pirólisis), originando átomos de iodo en el estado fundamental [2] , [52] .

#### 4.1.2. Resultados obtenidos y análisis de los mismos

Los resultados obtenidos se resumen en la tabla II. Se inclu-

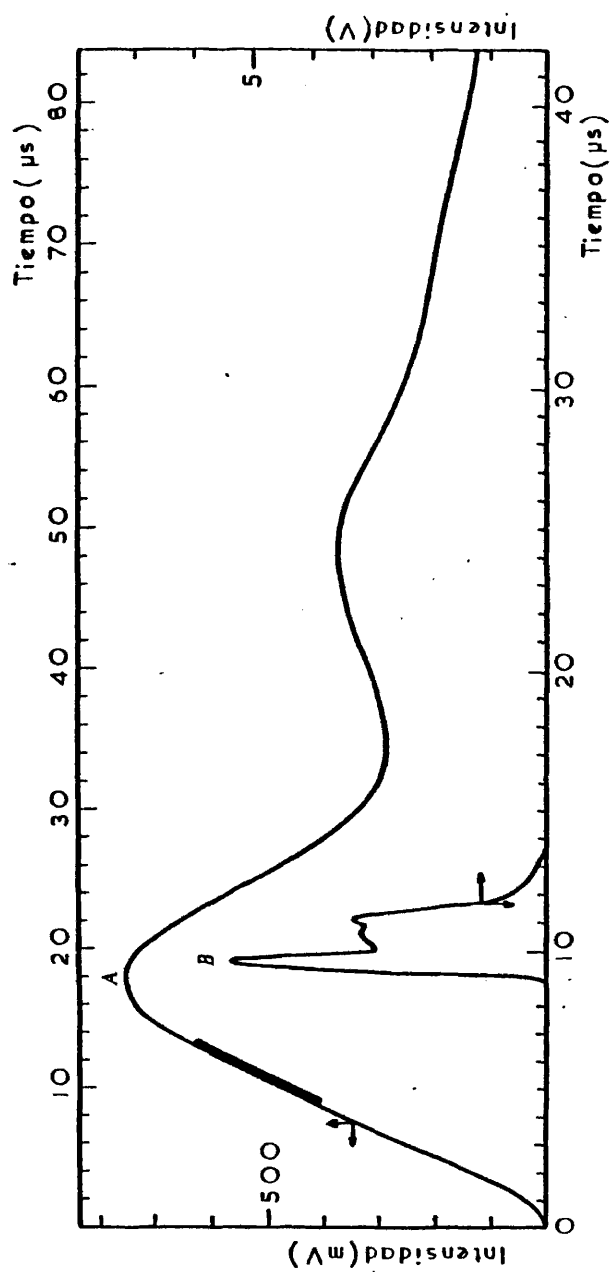


Figura 38.- Perfil del destello (A) y emisi3n l3ser (B) correspondientes al caso A1 de las tablas I y II. La parte gruesa de la curva del destello corresponde a la emisi3n l3ser.



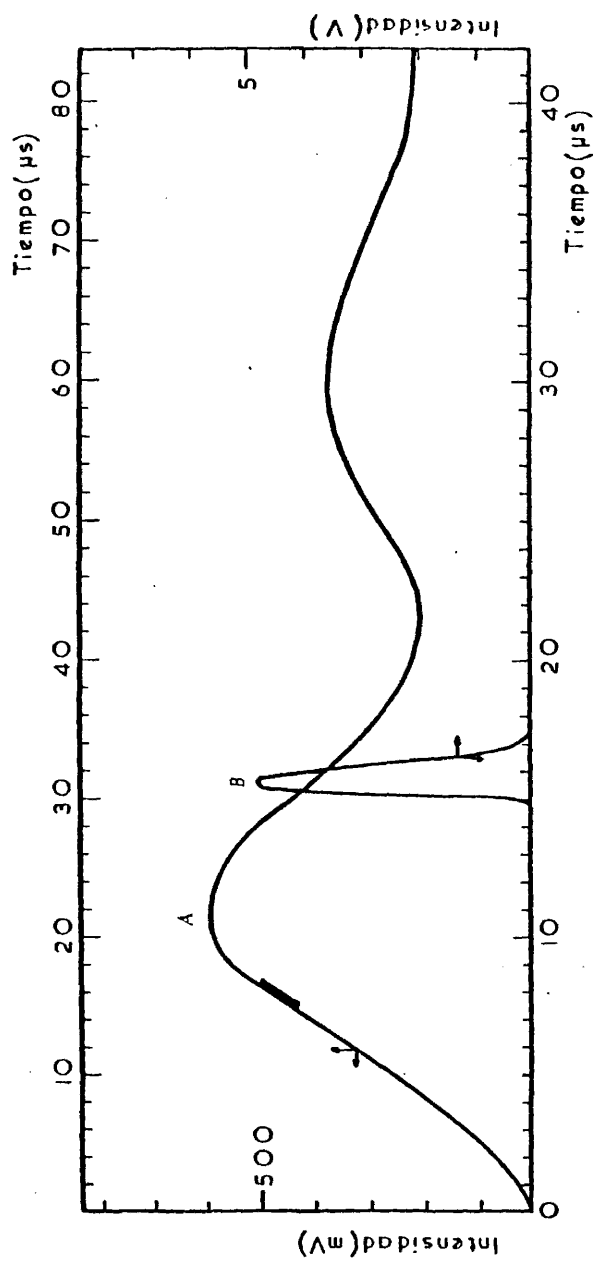


Figura 39.- Perfil del destello (A) y emisión láser (B) correspondientes al caso A2 de las tablas I y II. La parte gruesa de la curva del destello corresponde a la emisión láser.

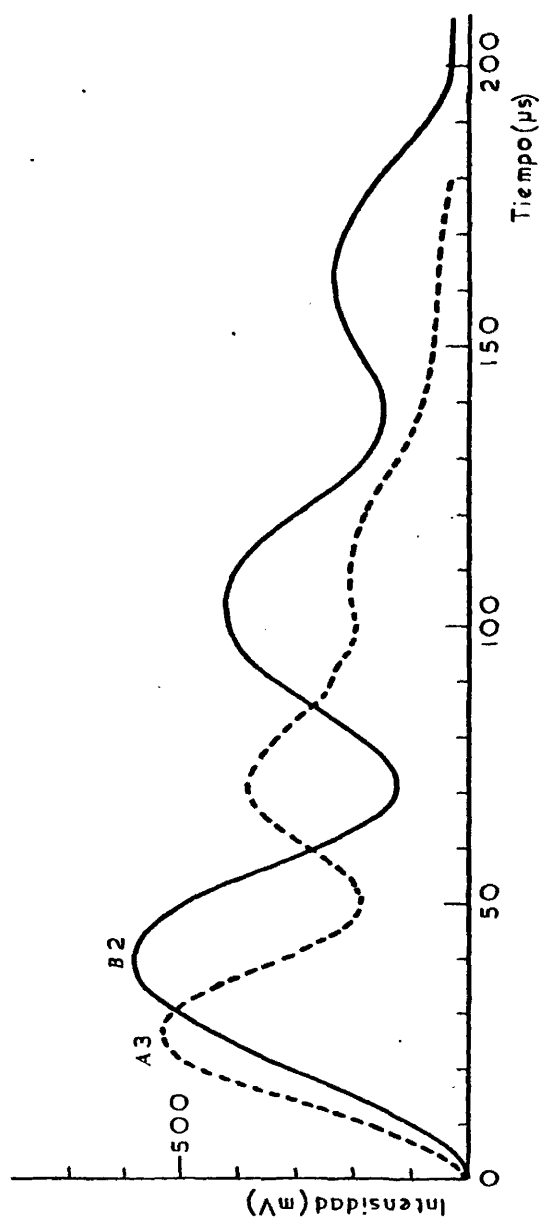


Figura 40.- Perfiles del destello correspondientes a los casos A3 y B2 de las tablas I y II.

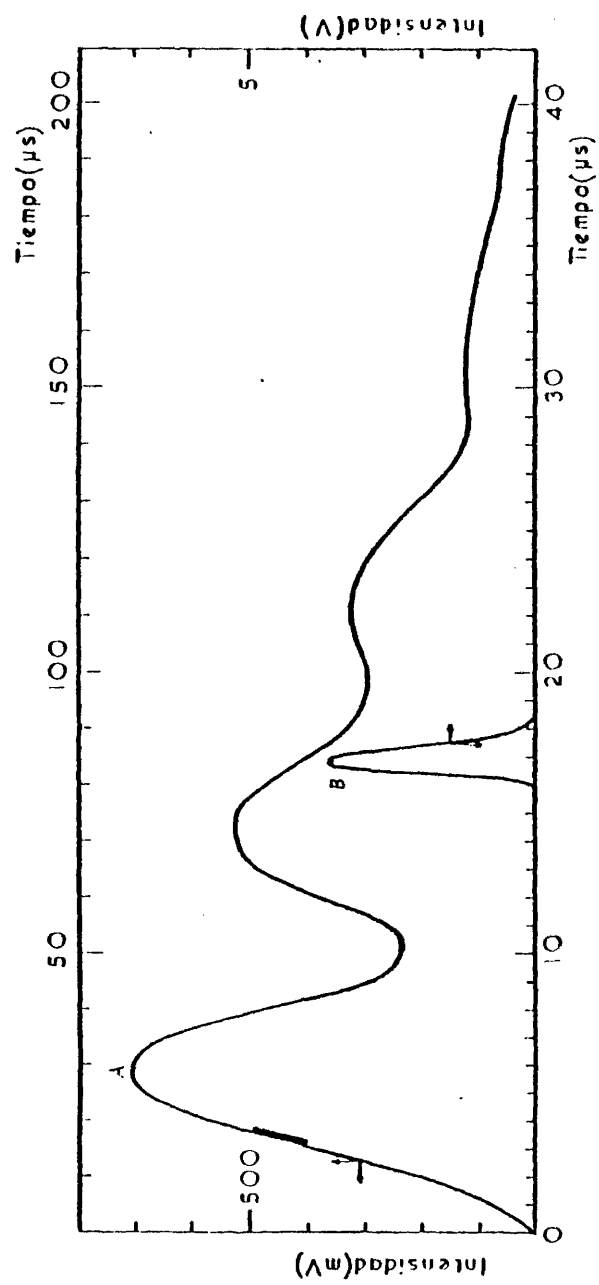


Figura 41.- Perfil del destello (A) y emisión láser (B) correspondientes al caso B1 de las tablas I y II. La parte gruesa de la curva del destello corresponde a la emisión láser.

TABLA II

Características de los destellos y de la emisión laser obtenida

		CASO A <sup>a)</sup>			CASO B <sup>a)</sup>		
		ENERGIA DE DESCARGA 1080J			ENERGIA DE DESCARGA 1692J		
		A1	A2	A3	B1	B2	
DESTELLO	Tiempo de subida (µs)	18	22	27	28	41	
	Intensidad máxima (voltios) <sup>b)</sup>	0,76	0,59	0,53	0,71	0,58	
EMISION  LASER	PICO 1. <sup>a)</sup>   Intensidad (voltios) <sup>b)</sup>	5,3	4,8	-	3,8	-	
	Tiempo (µs) <sup>c)</sup>	9,6	15,5	-	16,7	-	
	Comienzo de la señal (µs)	9,1	14,8	-	16,0	-	
	Duración total de la emisión(µs)	4,2	2,8	-	2,5	-	
INTENSIDAD DEL DESTELLO EN EL UMPRAL DEL LASER (voltios)		0,32	0,33	-	0,34	-	
DOSIS DE RADIACION HASTA EL ULTIMO PICO DE LA SEÑAL LASERE)		18	19	(21) <sup>f)</sup>	19	(29) <sup>f)</sup>	

a) Los subcasos corresponden a diferentes características del destello obtenidos intercalando en el circuito adecuadas autoinducciones.

b) Tal como se registra en el osciloscopio

c) Tiempo al que ocurre el máximo pico de intensidad.

d) El caso A1 muestra otros dos picos a 10,4 µs (3,4 V) y 11,3 µs (3,96 V)

e) Medida como área bajo el destello, unidades arbitrarias.

f) Valor calculado a la intensidad umbral del flash.

yen en la misma parte de los resultados ya expuestos en la tabla I por razones de claridad. Tal como se indicó en el apartado 3.3, en las medidas de tiempo se toma como tiempo cero el tiempo de comienzo del destello. Se observó buena repetitividad (dentro de un 2%).

Los resultados expuestos en la tabla II son el valor medio de, al menos, dos experimentos diferentes. En las figuras 38-41 se muestra la forma típica de la señal láser obtenida en cada uno de los casos reseñados en la tabla. Quizá merezca una explicación algo detallada la entrada de la tabla II titulada "Dosis de radiación hasta el último pico de la emisión láser". La idea básica consiste en que el área comprendida bajo la curva del destello hasta un tiempo determinado a partir del comienzo del mismo es proporcional a la cantidad de sustancia fotolizada hasta ese instante. Hemos calculado, pues, en cada uno de los casos reseñados las áreas comprendidas bajo la curva del destello cuando habían transcurrido ciertos tiempos significativos a partir del comienzo del mismo. Concretamente, en los casos en que se observó emisión láser se calcularon los valores de las áreas subtendidas por el destello hasta el instante en que ocurre el máximo del último pico de la emisión láser (o sea, hasta el instante en que comienza la brusca extinción de la emisión láser, figuras 38-41). En los casos en que no se observa emisión láser (A3 y B2) se calculó el área abarcada por el destello hasta el instante en que la intensidad del mismo alcanza el valor para el cual se observó emisión láser, con la misma energía de descarga, en los casos precedentes. Las áreas se determinaron por el siguiente procedimiento. Se dibujaron los destellos por medio de un registro acoplado al osciloscopio digital (apartado 3.3). Las áreas a medir se determinaron entonces pesándolas en una balanza de preci

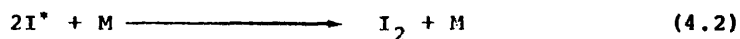
si3n. Los resultados obtenidos son los tabulados en la tabla II.

A la vista de los resultados sumariados en la tabla II, la primera observaci3n hace referencia a la fuerte dependencia del tiempo al que ocurre el pico de la emisi3n l3ser con el tiempo de subida del destello. En los experimentos a 1080 J el pico de la emisi3n l3ser ocurre a tiempos que van de 9,6 a 15,5  $\mu$ s y a carencia de emisi3n l3ser, seg3n el tiempo de subida del destello cambia de 18 a 22 y a 27  $\mu$ s, respectivamente. No obstante, si incrementamos la energ3a de descarga hasta 1692 J, observamos emisi3n l3ser incluso para tiempos de subida del destello de 28  $\mu$ s, si bien un ulterior aumento del tiempo de subida del destello conduce a la no observaci3n de emisi3n l3ser.

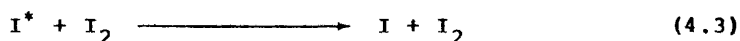
Parte de estos resultados se pueden racionalizar si tenemos en cuenta que el comienzo de la emisi3n l3ser tiene lugar a aproximadamente la misma intensidad del destello (tabla II) o, en otras palabras, a una similar velocidad de bombeo. Podemos hablar, por tanto, de un "umbral de intensidad del destello" por debajo del cu3l la acci3n l3ser no puede ocurrir.

A fin de centrar la situaci3n, consideremos brevemente la operaci3n l3ser (apartado 2.2.3). Uno de los aspectos m3s intrigantes del l3ser de iodo es, como ya hemos indicado en otro lugar, su naturaleza de auto-extinci3n, hecho que es aparente sin m3s que considerar la forma de la emisi3n l3ser en funci3n del tiempo. Un primer intento de suministrar una descripci3n cuantitativa de la operaci3n l3ser fue efectuado por Pollock [47], que atribuy3 la terminaci3n de la generaci3n de energ3a

en los láseres de alquil y perfluoroalquil ioduros al efecto directo del proceso:

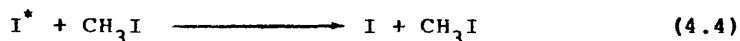


Consideraciones elementales muestran que la vida media de los átomos de iodo excitados es determinada en mucha mayor extensión por colisiones bimoleculares con moléculas de  $\text{I}_2$  [59] :

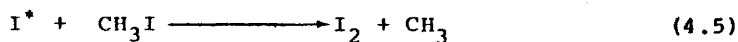


cuya constante de velocidad ha sido evaluada recientemente como  $k_3 = (3,6 \pm 0,3) \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \times \text{molécula}^{-1} \times \text{s}^{-1}$  [128] , [130] .

La relevancia de la desexcitación de  $\text{I}^*$  por el sustrato inicial:



fue puesta de manifiesto en la referencia [59] si bien su importancia relativa frente a (4.3) fue, probablemente subestimada. Más recientemente se ha acentuado el efecto del proceso (4.4) [131] , [223] y se ha puesto de manifiesto su competición con el proceso:



Con estas ideas en la mente, volvamos a nuestros resultados experimentales. La situación sería explicada satisfactoriamente si la desactivación de los átomos de iodo excitado fuera debida fundamentalmente a la ecuación (4.4) y/o (4.5). Se observaría emisión láser cuando la competición entre la velocidad de bombeo y la velocidad de desactivación se resolviese a favor de la primera. Como la última tiene un valor fijo

en nuestros experimentos ( la presión y composición de la mezcla se mantiene constante en todos los experimentos), el bombeo debe tener, como mínimo, este valor a fin de generar suficiente inversión de población como para inducir oscilación láser.

No obstante, el umbral de intensidad del destello parece ser condición necesaria pero no suficiente para la obtención de oscilación láser. En los experimentos con pulsos de destellos anchos (lento tiempo de subida) se alcanza dicho umbral pero no tiene lugar emisión láser. Parece como si hubiera una dependencia con respecto al tiempo al cual se alcanza dicha intensidad umbral. El parámetro que es directamente influenciado por el tiempo transcurrido hasta alcanzar la intensidad umbral es la dosis de radiación absorbida por el sustrato que, como ya indicamos, es una media de la extensión de la fotólisis del sustrato. Los resultados de la tabla II indican que el último pico de la emisión láser se obtiene cuando la dosis de radiación alcanza un valor fijo, pasado el cual no se observa emisión láser aunque la intensidad del destello sobrepase el umbral. Interpretamos estos resultados como indicadores de que si la cantidad de  $\text{CH}_3\text{I}$  descompuesto alcanza un cierto valor la radiación láser no puede continuar oscilando (o comenzar a oscilar). De acuerdo con los mecanismos de desactivación arriba discutidos, el efecto se podría adscribir a la formación de iodo molecular (a través del mecanismo (4.3)) en cantidad suficiente como para impedir que la inversión de población alcance el umbral.

La explicación de la incapacidad de los pulsos de destello anchos para iniciar la emisión láser es ahora clara. El cálculo en estos ca-



sos de la dosis de radiación liberada al tiempo al que la intensidad del destello alcanza el umbral proporciona un valor que excede al de la dosis recibida al final de la emisión en los casos en que hay señal láser, lo que indica que a dicho tiempo se ha producido bastante sustancia desactivadora como para, junto con los procesos (4.4) y/o (4.5), impedir la oscilación láser.

La conclusión dibujada por estos experimentos es, pues, que aunque el efecto desactivador del sustrato es obviamente muy importante, también se debe considerar el efecto de otros productos desactivadores formados en la fotólisis, los cuales pueden impedir la oscilación láser si se utilizan pulsos de destello anchos. El uso de pulsos de radiación estrechos minimizaría, por tanto, este efecto y permitiría obtener un mejor rendimiento energético de la emisión láser.

Se debe señalar que la explicación ofrecida es válida únicamente si el crecimiento del producto desactivador es exponencial, o si su producción muestra algún periodo de inducción. La formación lineal del producto desactivador produciría una competición lineal con la desactivación por  $\text{CH}_3\text{I}$  y originaría un incremento continuo en la intensidad umbral dependiendo de la pendiente del pulso de destello, lo que es contrario a nuestras observaciones. Un desactivador probable es el yodo molecular puesto que su formación por recombinación de iodo atómico debería seguir una ley cuadrática [224] , [225] . No obstante, la emisión estimulada podría ser simplemente limitada por pirólisis del sustrato [146] , [147] . También podrían ser asimismo importantes otros factores, como los radicales producidos en la fotólisis [226] . Se hace,

pués, necesario un estudio más detallado de los diversos aspectos de este láser. Este estudio se llevó a cabo y los resultados del mismo se exponen en los apartados siguientes.

#### 4.1.3. Circuito en régimen crítico

En el apartado 3.5.4 se indicó que cuando el régimen del circuito de descarga se hacía crítico por adición al mismo de una resistencia extra dejaba de obtenerse emisión láser a bajas energías de descarga ( $V_0 \approx 10000$  V) y se apuntó que la razón era la disminución excesiva de la intensidad del destello por disipación Joule en la resistencia extra. Esta interpretación se ve ahora apoyada por los resultados experimentales reseñados en el apartado anterior, los cuáles indican la existencia de un umbral de intensidad del destello por debajo del cuál no puede tener lugar la emisión láser. Para confirmar que esta es, efectivamente, la causa se realizaron algunos experimentos que describimos a continuación.

El dispositivo experimental es el mismo descrito en los anteriores apartados de esta sección, con la única diferencia de que el tubo láser que se usa ahora tiene 14 mm de diámetro interno. Las energías de descarga usadas fueron 882 J y 2694 J. El circuito se convierte en críticamente amortiguado cuando se intercala en el mismo una resistencia de  $0,5 \Omega$  (apartado 3.5.4). La única variable que manejamos en estos experimentos fue entonces el añadir o no añadir al circuito la resistencia extra de  $0,5 \Omega$ . Los resultados obtenidos se resumen en la tabla III, donde damos, en cada caso, el valor medio de tres experimentos distintos. Veamos que a la energía de descarga de 882 J únicamente se obtiene emisión

TABLA III

Características de los destellos y de la emisión láser obtenida

		CASO A <sup>a)</sup>		CASO B <sup>a)</sup>	
		ENERGIA DE DESCARGA 882J		ENERGIA DE DESCARGA 2694J	
		A1	A2		
DESTELLO	Tiempo de subida (us) Intensidad máxima (voltios) <sup>b)</sup>	18 0,71	18 0,40	18 0,65	
EMISION	PICO 1. <sup>d)</sup>	5,3	-	2,7	
	Intensidad(voltios) <sup>b)</sup> Tiempo (us) <sup>c)</sup>	13,6	-	12,8	
LASER	Comienzo de la señal (us)	13,1	-	12,3	
	Duración total de la emisión (us)	5,5	-	5,3	
INTENSIDAD DEL DESTELLO EN EL UMBRAL DEL					
LASER (voltios)		0,47	-	0,45	
DOSIS DE RADIACION HASTA EL ULTIMO PICO					
DE LA SENAL LASER e)		42	-	40	

a) Los subcasos corresponden a las condiciones: A1, circuito no amortiguado críticamente; A2, circuito amortiguado críticamente por adición de una resistencia extra de 0,5 ; B, mismo que A2.

b) Tal como se registran en el osciloscopio.

c) Tiempo al que ocurre el máximo de intensidad.

d) Los casos A1 y B muestran otros picos. El caso A1 a 15,0 us (3,2 V) y 16,7 us (2,4 V). El caso B a 13,5 us (4,1 V) y 16,1 us (3,1V)

e) Medida como área bajo el destello, unidades arbitrarias.

láser cuando no se intercala la resistencia extra en el circuito, siendo necesario aumentar la energía de descarga a 2694 J para obtener emisión láser con el circuito críticamente amortiguado. La razón por la que no se obtiene emisión láser cuando la energía de descarga es 882 J y el circuito se amortigua críticamente es obvia: el umbral de intensidad del destello para la obtención de emisión láser está en torno a 0,45 V mientras que el valor máximo de la intensidad del destello en el caso A2 es de solo 0,40 V. En el caso B, por el contrario, el destello sobrepasa ampliamente la intensidad umbral, alcanzando un valor máximo próximo al del caso A1.

#### 4.2. ADICION DE GASES INERTES Y VARIACION DE LA ENERGIA DE DESCARGA

En esta sección vamos a proceder al estudio de la influencia que sobre la emisión láser ejercen diversas presiones de gases inertes añadidas al sustrato, así como la influencia, en cada caso, de la variación de la energía de descarga. Ya indicamos en la sección 4.1 que el uso del Argon como diluyente podía evitar el rápido calentamiento del sustrato durante la fotólisis. Otros gases, como el  $\text{CO}_2$  o  $\text{SF}_6$ , ejercen el mismo efecto, de modo que un contenido significativo de los mismos en la mezcla de trabajo hace que el calentamiento térmico de la misma no sea grande (100-150 °C) a causa de la gran capacidad calorífica del gas diluyente [155] .

Es un hecho conocido el que el crecimiento de la inversión de población  $\Delta N$  en el láser de iodo es un proceso dinámico que no solamente depende del bombeo, sino que también se ve influenciado por la presencia de los radicales producidos en la fotólisis [224] , [48] , [103] . Se sa-

be, asimismo, que la adición de gases inertes al sustrato reduce la influencia de los radicales, si bien nuestro conocimiento de los mecanismos subyacentes a dicho proceso es todavía bastante incompleto. Un estudio variando de modo sistemático la proporción del gas diluyente empleado y la energía de descarga utilizada nos debería permitir profundizar en el conocimiento de los mecanismos subyacentes a la operación láser, así como completar y ampliar la información que nos proporcionaron los experimentos reseñados en la sección 4.1.

#### 4.2.1. Dispositivo experimental

El dispositivo experimental empleado es el descrito en los apartados 3.1 al 3.4, con lámpara concéntrica al tubo láser y capacidad total del sistema de 8  $\mu$ F. Hemos quitado 10  $\mu$ F con respecto a los experimentos reseñados en la sección 4.1 a efectos de lograr un más rápido tiempo de subida del destello puesto que, como ya hemos discutido en dicha sección, parece que los pulsos rápidos disminuyen el efecto de los productos desactivadores del iodo excitado. El uso de pulsos rápidos nos permite, asimismo, acercarnos al modo de trabajo llamado "conmutador de ganancia", tal como se discutió en el apartado 3.5.4.

Las características temporales del destello, que son prácticamente independientes del voltaje de descarga usado, son las ya descritas en el apartado 3.2 (anchura a media altura, 30  $\mu$ s; tiempo de subida, 10  $\mu$ s). Las características del circuito utilizado son las reseñadas en el apartado 3.5.4. Las ventanas usadas para cerrar a ambos lados el tubo láser fueron cubreobjetos de microscopio (apartado 3.1). El tubo láser uti

lizado tiene 0,75 cm de diámetro interno. La longitud total de la cámara de reacción fue de 67 cm y la longitud iluminada (longitud de la lámpara de destello) fue de 42 cm. En estas condiciones las pérdidas en la cavidad pasiva son del  $(30 \pm 1)\%$  (apartado 4.4.2.1). Se realizaron experimentos con  $\text{CH}_3\text{I}$  puro y  $\text{CH}_3\text{I}$  diluido en Ar,  $\text{CO}_2$  y  $\text{SF}_6$  en las proporciones 1:1, 1:3 y 1:9. La purificación de los reactivos y la preparación de la mezclas se hizo siguiendo el procedimiento descrito en el apartado 3.6.2. Como ya se indicó entonces la presión parcial del  $\text{CH}_3\text{I}$  en la cámara de reacción fue en todos los casos de 6 Torr. Los gases diluyentes se eligieron por su baja constante de velocidad para desactivar el iodo excitado [103]. En cada caso se hicieron experimentos a 538, 829 y 1197 J de energía de descarga.

#### 4.2.2. Resultados obtenidos

Los resultados obtenidos se sumanizan en las tablas IV-XIII y en las figuras 42-50. En la tabla IV se presentan los resultados con  $\text{CH}_3\text{I}$  puro a las distintas energías de descarga. Las tablas V, VI y VII presentan los resultados para las mezclas de  $\text{CH}_3\text{I}$  con Ar. Las tablas VIII, IX y X proporcionan los resultados correspondientes a las mezclas de  $\text{CH}_3\text{I}$  con  $\text{CO}_2$ , y las tablas XI, XII y XIII los correspondientes a las mezclas de  $\text{CH}_3\text{I}$  con  $\text{SF}_6$ . En las figuras se comparan entre sí, y con el caso en que se emplea  $\text{CH}_3\text{I}$  puro, las señales láser que se obtienen a cada energía de descarga cuando se emplean diferentes gases diluyentes en una proporción determinada. En las figuras 42-44 se presentan las señales láser obtenidas con  $\text{CH}_3\text{I}$  puro o diluido en Ar,  $\text{CO}_2$  o  $\text{SF}_6$  en la proporción 1:1 a las tres energías de descarga utilizadas. En las figuras

45-47 se presentan dichas señales cuando la proporción de las mezclas  $\text{CH}_3\text{I}$ : gas moderador es de 1:3, y en las figuras 48-50 cuando dicha proporción es 1:9. No se ha dibujado en las figuras escala de intensidades; la intensidad está en unidades arbitrarias y tanto los máximos de los destellos como los de las señales láser se han normalizado a la misma altura (la escala de intensidad del destello es, en cada caso, distinta de la de la emisión láser) de modo que las figuras 42-50 nos proporcionan únicamente el comportamiento temporal tanto del destello como de la emisión láser. La escala de tiempos es la misma para el destello y para la emisión láser. En las medidas de tiempo se tomó como cero el tiempo del comienzo del destello.

Los resultados expuestos en las tablas y en las figuras son valores medios de al menos tres experimentos distintos (cuando la repetitividad de los resultados se mantuvo dentro del 2% los valores medios son de tres experimentos; cuando la repetitividad fue peor-en cualquier caso dentro del 5%-, se tomaron valores medios de 5 a 7 experimentos distintos). En las medidas de intensidad de la emisión láser hay que tener en cuenta que solo son comparables entre sí las correspondientes a una misma mezcla. Es decir, podemos efectuar comparaciones entre las intensidades de las emisiones láser reseñadas dentro de cada una de las tablas IV a XIII, pero no son comparables entre sí las de una tabla con las de las restantes tablas. La razón estriba en que pequeñas modificaciones del enfoque de la señal sobre el detector pueden afectar sensiblemente a la intensidad registrada de la misma. Durante la realización de la serie de experimentos correspondientes a una mezcla determinada las condiciones de enfoque se mantienen idénticas. Estas condiciones se han modificado casi inevitablemente a la hora de la realización de

TABLA IV

Características del destello y de la emisión láser, CH<sub>3</sub>I puro.

		ENERGIA DE DESCARGA (Julios)		
		538	829	1197
DESTELLO	Tiempo de subida (μs)	10,0	9,7	9,7
	Intensidad máxima (voltios) <sup>a)</sup>	0,46	0,57	0,85
EMISION  LASER	Comienzo de la señal (μs)	4,2	2,7	2,1
	Final de la señal (μs)	8,9	7,3	6,1
	Duración total de la emisión(μs)	4,7	4,6	4,0
	PRIMER Intensidad(voltios) <sup>a)</sup>	4,8	4,5	4,5
	PICO <sup>c)</sup> Tiempo (μs) <sup>b)</sup>	4,7	3,2	2,5
	ULTIMO Intensidad (voltios) <sup>a)</sup>	1,8	2,7	3,0
	PICO Tiempo (μs) <sup>b)</sup>	7,3	5,1	4,3
INTENSIDAD DEL DESTELLO EN EL UMBRAL DEL LASER (voltios) <sup>a)</sup>		0,17	0,13	0,15

a) Tal como se registra en el osciloscopio.

b) Tiempo al que ocurre el pico indicado.

c) El primer pico es también el más intenso.



TABLA V

Características del destello y de la emisión láser, CH<sub>3</sub>I + Ar, proporción 1:1

		ENERGIA DE DESCARGA (Julios)	
		538	1197
DESTELLO	Tiempo de subida (μs)	9,8	9,8
	Intensidad máxima (voltios) <sup>a)</sup>	0,45	0,54
EMISION	Comienzo de la señal (μs)	3,6	2,7
	Final de la señal (μs)	9,3	7,4
LASER	Duración total de la emisión (μs)	5,7	4,2
	PRIMER PICO <sup>c)</sup>	3,9	4,3
	Intensidad (voltios) <sup>a)</sup>	4,1	3,1
	Tiempo (μs) <sup>b)</sup>	2,0	2,8
	ULTIMO PICO	7,6	5,4
	Intensidad (voltios) <sup>a)</sup>		
INTENSIDAD DEL DESTELLO EN EL UMBRAL DEL LASER (voltios) <sup>a)</sup>		0,13	0,12
			0,11

a) Tal como se registra en el osciloscopio.

b) Tiempo al que ocurre el pico indicado.

c) El primer pico es también el más intenso.

TABLA VI

Características del destello y de la emisión láser, CH<sub>3</sub>I + Ar, proporción 1:3

		ENERGIA DE DESCARGA (Julios)	
		538	1197
DESTELLO	Tiempo de subida (us)	10,0	10,0
	Intensidad máxima (voltios) a)	0,42	0,80
EMISION	Comienzo de la señal (us)	3,3	2,5
	Final de la señal (us)	9,6	7,6
LASER	Duración total de la emisión (us)	6,3	5,1
	PRIMER Intensidad (voltios) a)	3,6	3,7
	PICO c) Tiempo (us) b)	3,7	3,0
	ULTIMO Intensidad (voltios) a)	2,1	2,3
	PICO Tiempo (us) b)	7,8	6,1
INTENSIDAD DEL DESTELLO EN EL			
UMBRAL DEL LASER (voltios) a)		0,10	0,12
			0,13

- a) Tal como se registra en el osciloscopio.  
b) Tiempo al que ocurre el pico indicado.  
c) El primer pico es también el más intenso.

TABLA VII

Características del destello y de la emisión láser, CH<sub>3</sub>I + Ar, proporción 1:9

		ENERGIA DE DESCARGA (Julios)	
		538	829
DESTELLO	Tiempo de subida (us)	10,0	10,0
	Intensidad máxima (voltios) <sup>a)</sup>	0,42	0,50
EMISION	Comienzo de la señal (us)	3,8	2,5
	Final de la señal (us)	11,1	8,3
	Duración total de la emisión (us)	7,3	5,8
	PRIMER Intensidad (voltios) <sup>a)</sup>	4,0	4,5
	PICO <sup>c)</sup> Tiempo (us) <sup>b)</sup>	4,3	2,9
LASER	ULTIMO Intensidad (voltios) <sup>a)</sup>	1,2	2,6
	PICO Tiempo (us) <sup>b)</sup>	9,7	6,3
INTENSIDAD DEL DESTELLO EN EL UMBRAL DEL LASER (voltios) <sup>a)</sup>		0,13	0,10
		0,13	0,11

a) Tal como se registra en el osciloscopio.

b) Tiempo al que ocurre el pico indicado.

c) El primer pico es también el más intenso.

TABLA VIII

Características del destello y de la emisión láser,  $\text{CH}_3\text{I} + \text{CO}_2$ , proporción 1:1

		ENERGIA DE DESCARGA (Julios)	
		538	1197
DESTELLO	Tiempo de subida (us)	10,0	9,9
	Intensidad máxima (voltios) <sup>a)</sup>	0,29	0,43
EMISION	Comienzo de la señal (us)	3,1	2,4
	Final de la señal (us)	8,7	6,8
	Duración de la emisión(us)	5,6	4,4
	PRIMER Intensidad(voltios) <sup>a)</sup>	2,8	3,0
	PICO <sup>c)</sup>   Tiempo (us) <sup>b)</sup>	3,6	2,9
LASER	ULTIMO Intensidad (voltios) <sup>a)</sup>	1,1	0,9
	PICO   Tiempo (us) <sup>b)</sup>	7,2	5,7
INTENSIDAD DEL DESTELLO EN EL			
UMbral DEL LASER (voltios) <sup>a)</sup>		0,08	0,08

a) Tal como se registra en el osciloscopio.

b) Tiempo al que ocurre el pico indicado.

c) El primer pico es también el más intenso.

TABLA IX

Características del destello y de la emisión láser,  $\text{CH}_3\text{I} + \text{CO}_2$ , proporción 1:3

		ENERGIA DE DESCARGA (Julios)	
		538	1197
DESTELLO	Tiempo de subida ( $\mu\text{s}$ )	9,8	10,2
	Intensidad máxima (voltios) <sup>a)</sup>	0,29	0,44
EMISION	Comienzo de la señal ( $\mu\text{s}$ )	3,2	3,2
	Final de la señal ( $\mu\text{s}$ )	8,0	8,5
	Duración total de la emisión ( $\mu\text{s}$ )	4,8	5,3
	PRIMER Intensidad (voltios) <sup>a)</sup>	2,5	2,2
LASER	PICO <sup>c)</sup> Tiempo ( $\mu\text{s}$ ) <sup>b)</sup>	3,8	3,7
	ULTIMO Intensidad (voltios) <sup>a)</sup>	1,1	0,7
	PICO Tiempo ( $\mu\text{s}$ ) <sup>b)</sup>	6,8	7,4
INTENSIDAD DEL DESTELLO EN EL UMBRAL DEL LASER (voltios) <sup>a)</sup>		0,10	0,10
			0,08

a) Tal como se registra en el osciloscopio.

b) Tiempo al que ocurre el pico indicado.

c) El primer pico es también el más intenso.

TABLA X

Características del destello y de la emisión láser, CH<sub>3</sub>I + CO<sub>2</sub>, proporción 1:9

		ENERGIA DE DESCARGA (Julios)	
		538	1197
DESTELLO	Tiempo de subida (μs)	10,1	10,1
	Intensidad máxima (voltios) <sup>a)</sup>	0,30	0,44
EMISION	Comienzo de la señal (μs)	5,7	3,6
	Final de la señal (μs)	11,1	8,5
LASER	Duración total de la emisión (μs)	5,4	4,9
	PRIMER Intensidad (voltios) <sup>a)</sup>	4,7	4,6
	PICO <sup>c)</sup> Tiempo (μs) <sup>b)</sup>	6,3	4,1
	ULTIMO Intensidad (voltios) <sup>a)</sup>	2,5	2,6
	PICO Tiempo (μs) <sup>b)</sup>	9,8	7,3
INTENSIDAD DEL DESTELLO EN EL UMBRAL DEL LASER (voltios) <sup>a)</sup>		0,20	0,13
			0,20

a) Tal como se registra en el osciloscopio.

b) Tiempo al que ocurre el pico indicado.

c) El primer pico es también el más intenso.

TABLA XI

Características del destello y de la emisión láser,  $\text{CH}_3\text{I} + \text{SF}_6$ , proporción 1:1

		ENERGIA DE DESCARGA (Julios)	
		538	1197
DESTELLO	Tiempo de subida ( $\mu\text{s}$ )	10,0	9,7
	Intensidad máxima (voltios) <sup>a)</sup>	0,29	0,41
EMISION	Comienzo de la señal ( $\mu\text{s}$ )	3,1	2,3
	Final de la señal ( $\mu\text{s}$ )	8,5	7,0
LASER	Duración total de la emisión ( $\mu\text{s}$ )	5,4	4,7
	PRIMER Intensidad (voltios) <sup>a)</sup>	1,9	2,1
	PICO <sup>c)</sup> Tiempo ( $\mu\text{s}$ ) <sup>b)</sup>	3,5	2,6
	ULTIMO Intensidad (voltios) <sup>a)</sup>	0,6	0,9
	PICO Tiempo ( $\mu\text{s}$ ) <sup>b)</sup>	7,2	6,0
INTENSIDAD DEL DESTELLO EN EL UMBRAL DEL LASER (voltios) <sup>a)</sup>		0,09	0,09
			0,10

a) Tal como se registra en el osciloscopio.

b) Tiempo al que ocurre el pico indicado.

c) El primer pico es también el más intenso.

TABLA XII

Características del destello y de la emisión láser,  $\text{CH}_3\text{I} + \text{SF}_6$ , proporción 1:3.

		ENERGIA DE DESCARGA (Julios)		
		538	829	1197
DESTELLO	Tiempo de subida ( $\mu\text{s}$ )	10,0	10,0	9,7
	Intensidad máxima (voltios) <sup>a)</sup>	0,35	0,47	0,63
EMISION	Comienzo de la señal ( $\mu\text{s}$ )	3,1	2,6	2,0
	Final de la señal ( $\mu\text{s}$ )	11,8	11,0	9,5
	Duración total de la emisión ( $\mu\text{s}$ )	8,7	8,4	7,5
	PRIMER Intensidad (voltios) <sup>a)</sup>	1,8	1,9	2,2
LASER	PICO <sup>c)</sup> Tiempo ( $\mu\text{s}$ ) <sup>b)</sup>	3,5	3,0	2,4
	ULTIMO Intensidad (voltios) <sup>a)</sup>	1,5	1,6	0,5
	PICO Tiempo ( $\mu\text{s}$ ) <sup>b)</sup>	10,6	9,5	8,6
	Mínimo de intensidad entre bloques de picos ( $\mu\text{s}$ ) <sup>d)</sup>	8,7	7,9	7,4
INTENSIDAD DEL DESTELLO EN EL UMBRAL DEL LASER (voltios) <sup>a)</sup>		0,11	0,10	0,13

a) Tal como se registra en el osciloscopio.

b) Tiempo al que ocurre el pico indicado.

c) El primer pico es también el más intenso.

d) En las mezclas 1:3 y 1:9 la señal consiste en dos bloques de picos claramente diferenciados con un mínimo de intensidad entre ambos. Indicamos el tiempo al que ocurre este mínimo.



**TABLA XIII**

Características del destello y de la emisión láser, CH<sub>3</sub>I + SF<sub>6</sub>, proporción 1:9

		ENERGIA DE DESCARGA (Julios)	
		538	1197
DESTELLO	Tiempo de subida (μs) Intensidad máxima (voltios) a)	10,0 0,37	10,0 0,51
EMISION	Comienzo de la señal (μs)	3,6	3,2
	Final de la señal (μs)	13,5	12,3
	Duración total de la emisión(μs)	9,9	9,1
	PRIMER Intensidad(voltios) a)	3,8	3,8
LASER	PICO c)   Tiempo (μs) b)	4,1	3,7
	ULTIMO Intensidad(voltios) a)	1,3	0,4
	PICO   Tiempo (μs) b)	12,3	11,5
	Mínimo de intensidad entre bloques de picos (μs) d)	8,4	7,7
INTENSIDAD DEL DESTELLO EN EL UMBRAL DEL LASER (voltios) a)		0,12	0,14

a) Tal como se registra en el osciloscopio.

b) Tiempo al que ocurre el pico indicado.

c) El primer pico es también el más intenso.

d) En las mezclas 1:3 y 1:9 la señal consiste en dos bloques de picos claramente diferenciados con un mínimo de intensidad entre ambos. Indicamos el tiempo al que ocurre este mínimo.

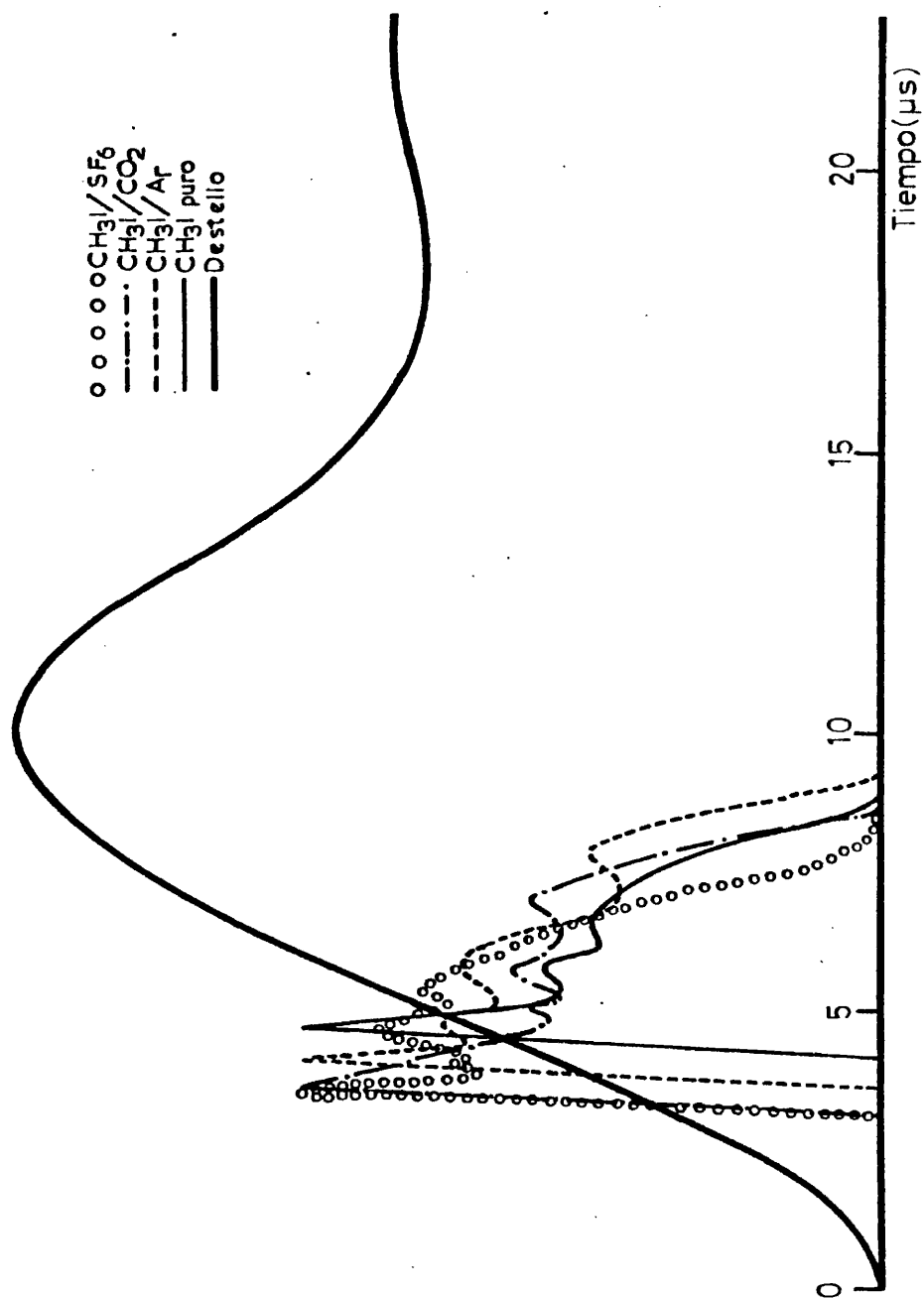


Figura 42.- Comportamiento temporal de la emisión láser v del destello. Proporción de las mezclas, 1:1. Energía de descarga, 538 J. Longitud de onda de la radiación de bombeo,  $\lambda > 165\text{nm}$ .

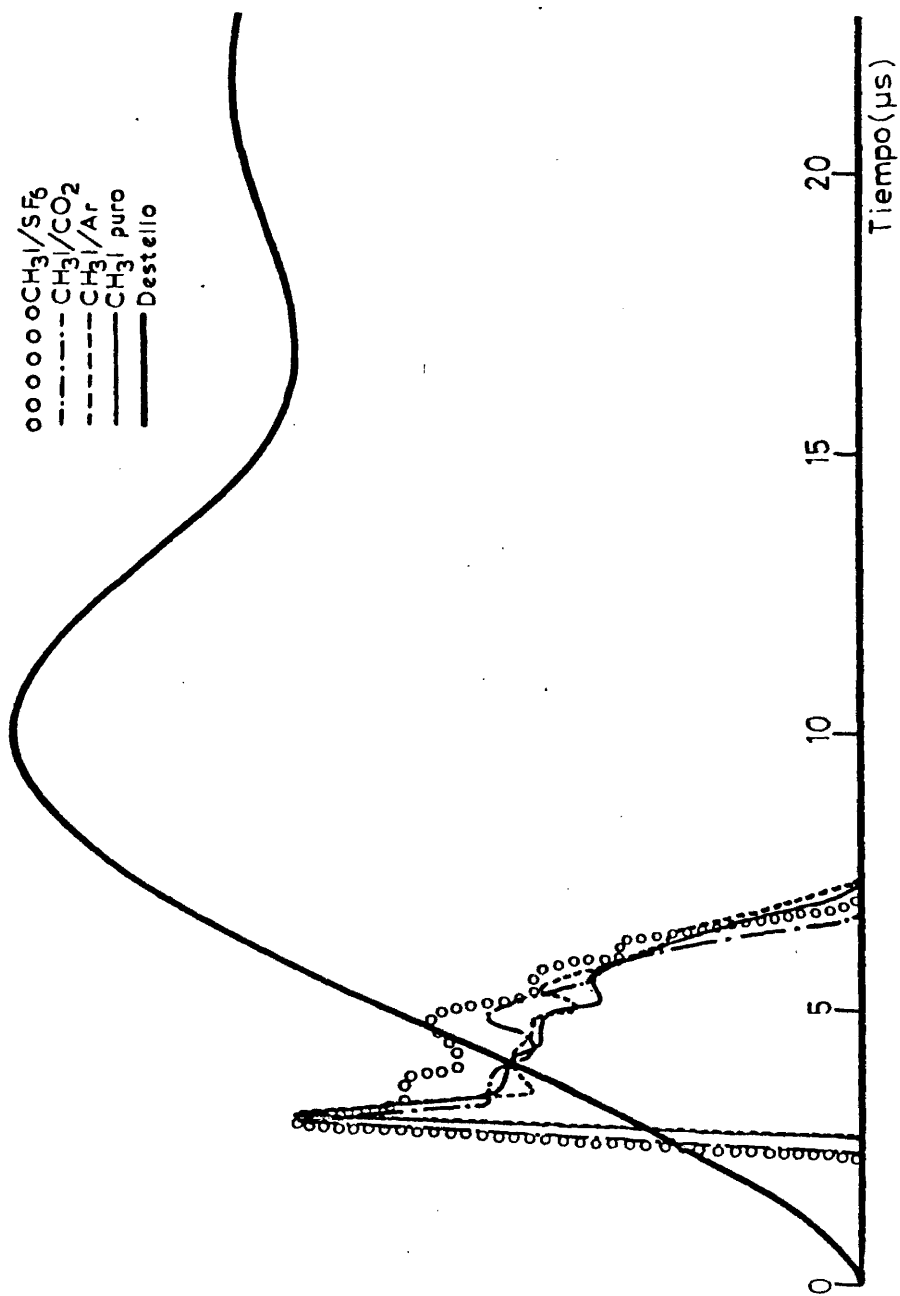


Figura 43.- Comportamiento temporal de la emisión láser y del destello. Proporción de las mezclas, 1:1. Energía de descarga, 829 J. Longitud de onda de la radiación de bombeo,  $\lambda > 165$  nm.

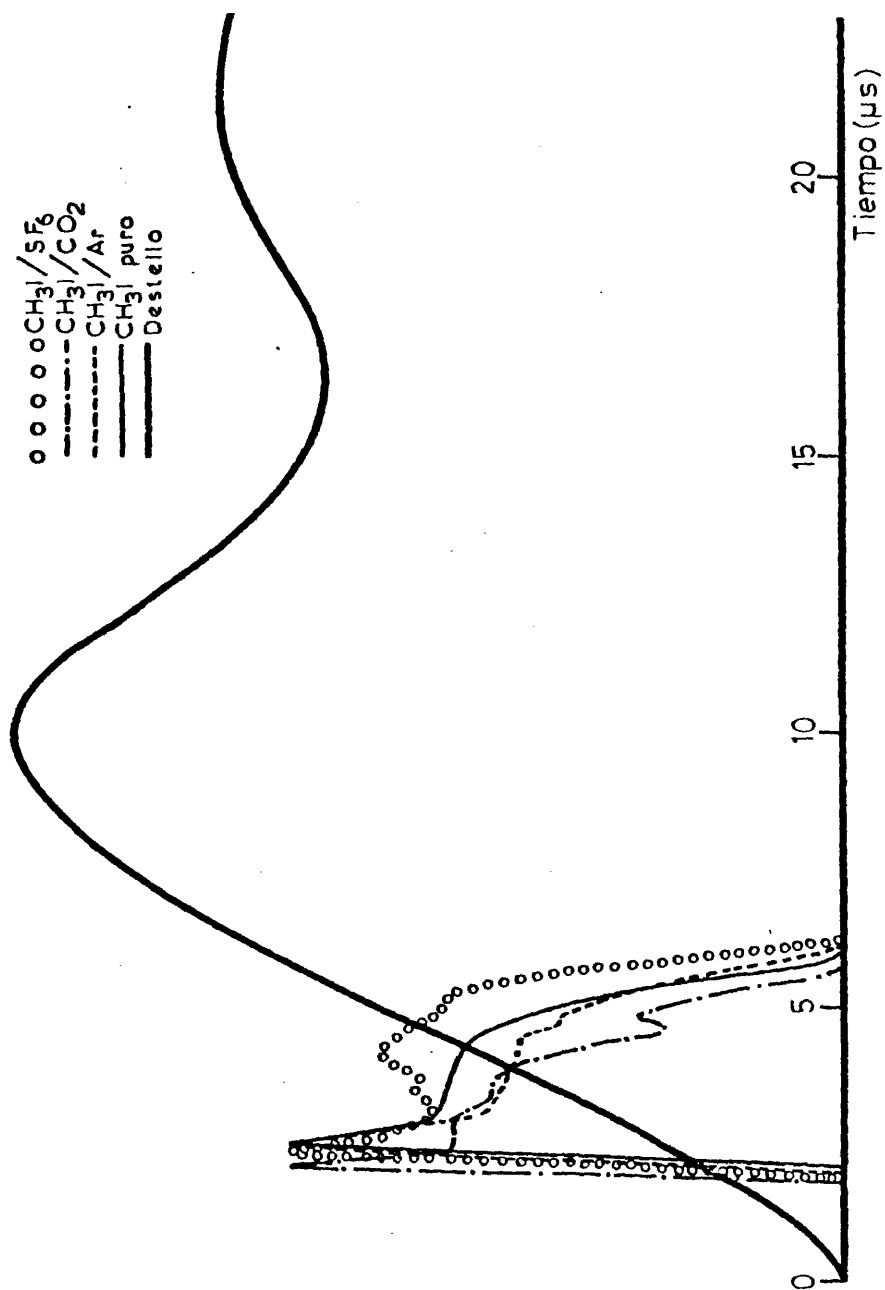


Figura 44.- Comportamiento temporal de la emisión láser v del destello. Proporción de las mezclas, 1:1. Energía de descarga, 1197 J. Longitud de onda de la radiación de bombeo,  $\lambda > 165 \text{ nm}$ .

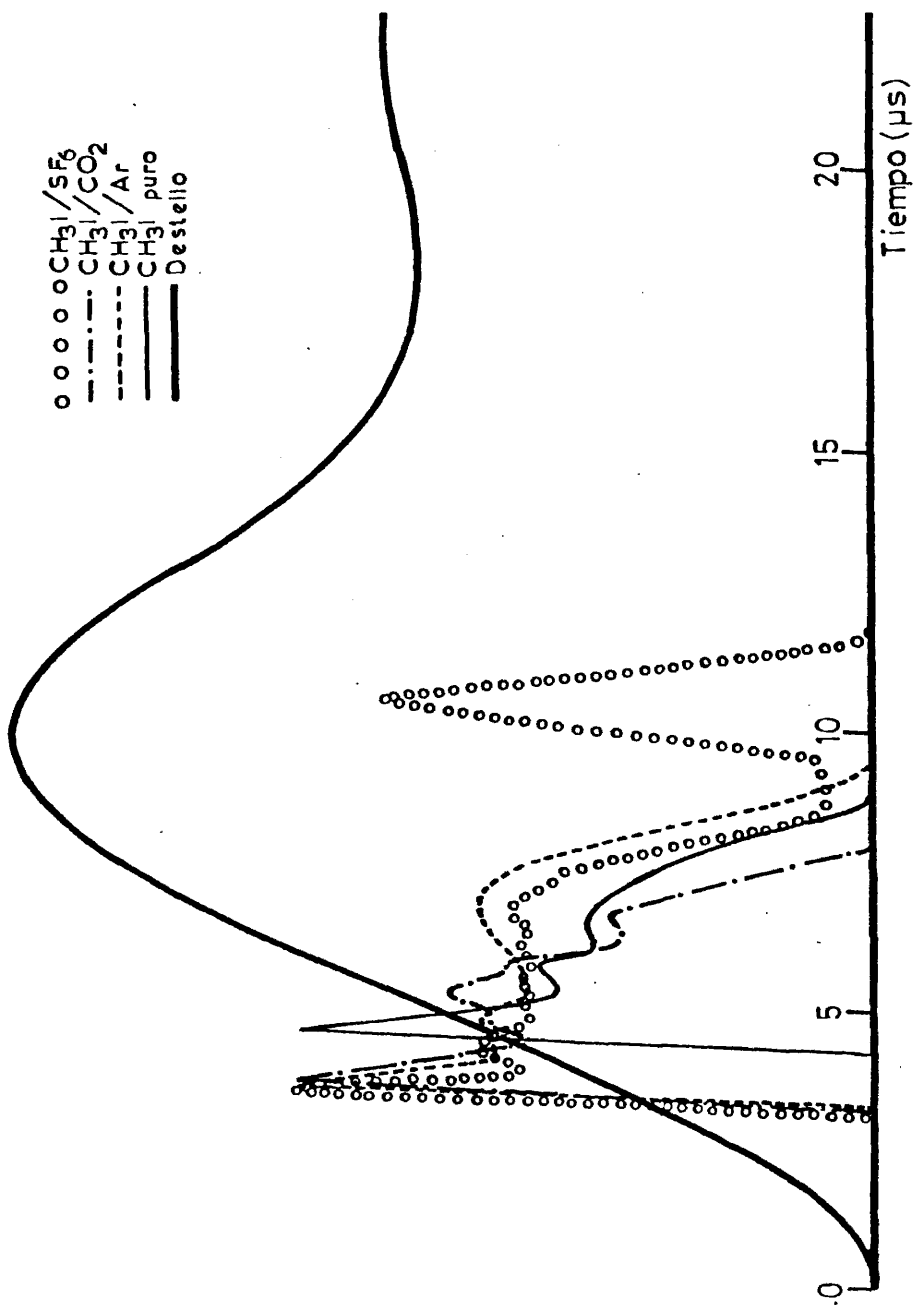


Figura 45.- Comportamiento temporal de la emisión láser y del destello. Proporción de las mezclas, 1:3. Energía de descarga, 538 J. Longitud de onda de la radiación de bombeo,  $\lambda > 165$  nm.

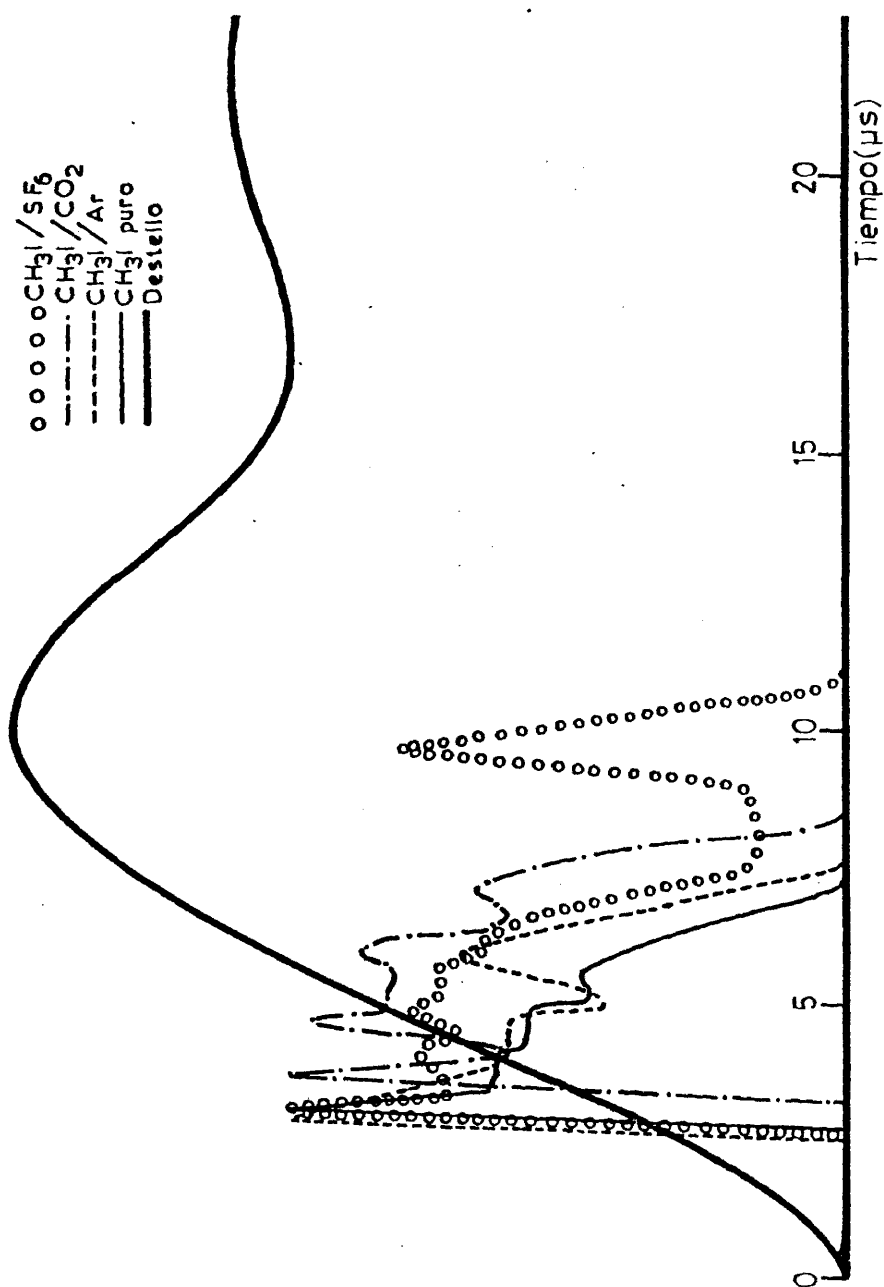


Figura 46.-Comportamiento temporal de la emisión láser y del destello. Proporción de las mezclas, 1:3. Energía de descarga, 829 J. Longitud de onda de la radiación de bombeo,  $\lambda > 165$  nm.

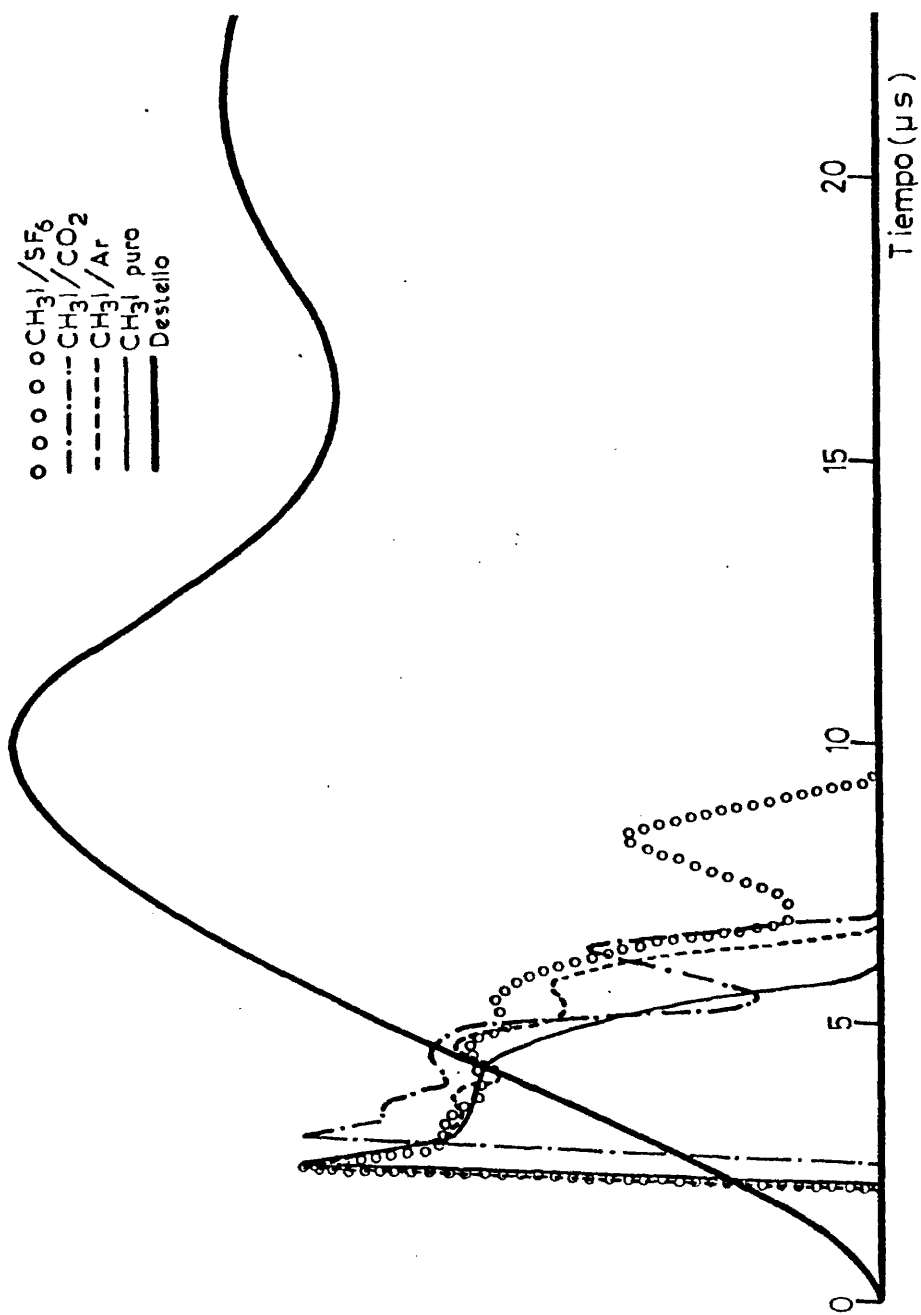


Figura 47.- Comportamiento temporal de la emisión láser y del destello. Proporción de las mezclas, 1:3. Energía de descarga, 1197 J. Longitud de onda de la radiación de bombeo,  $\lambda > 165\text{nm}$ .

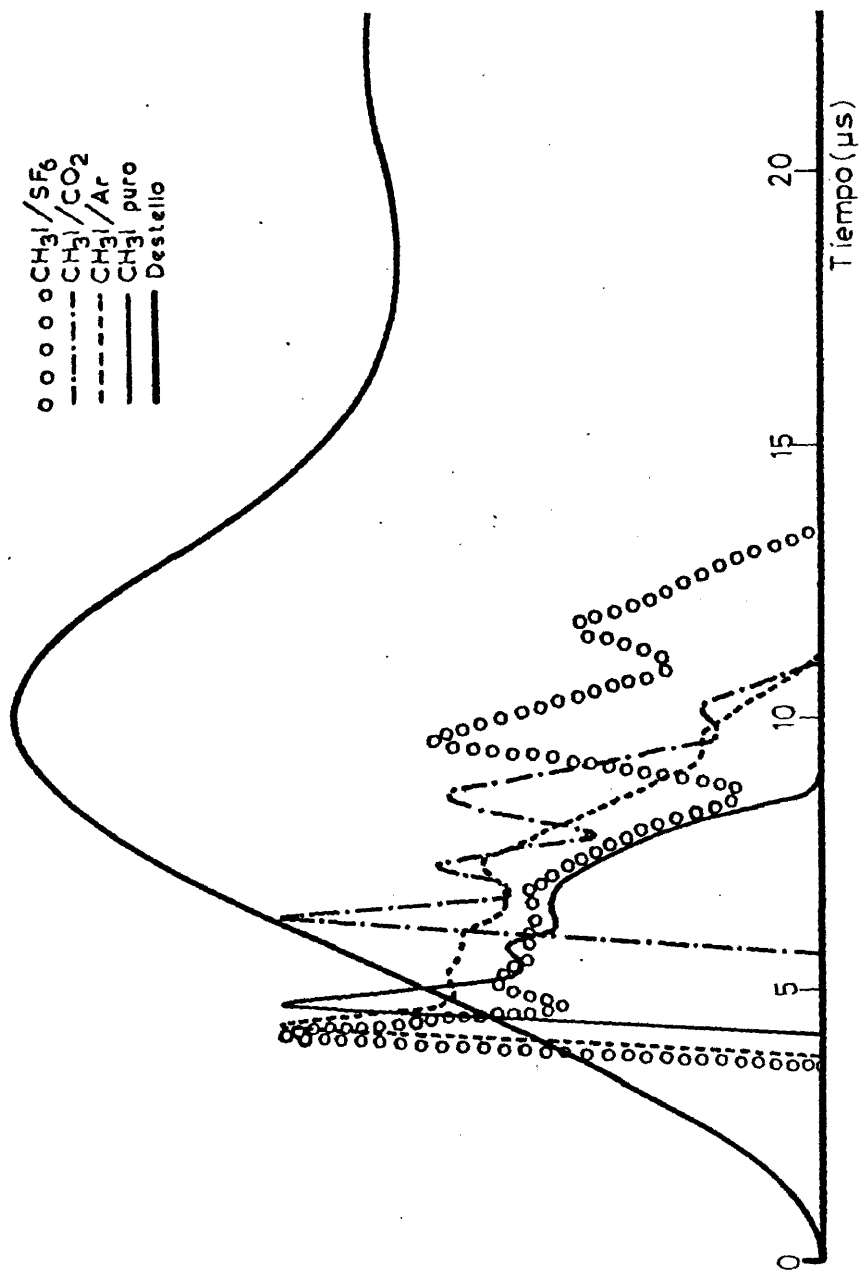


Figura 48.- Comportamiento temporal de la emisión láser y del destello. Proporción de las mezclas, 1:9. Energía de descarga, 538 J. Longitud de onda de la radiación de bombeo,  $\lambda > 165$  nm.



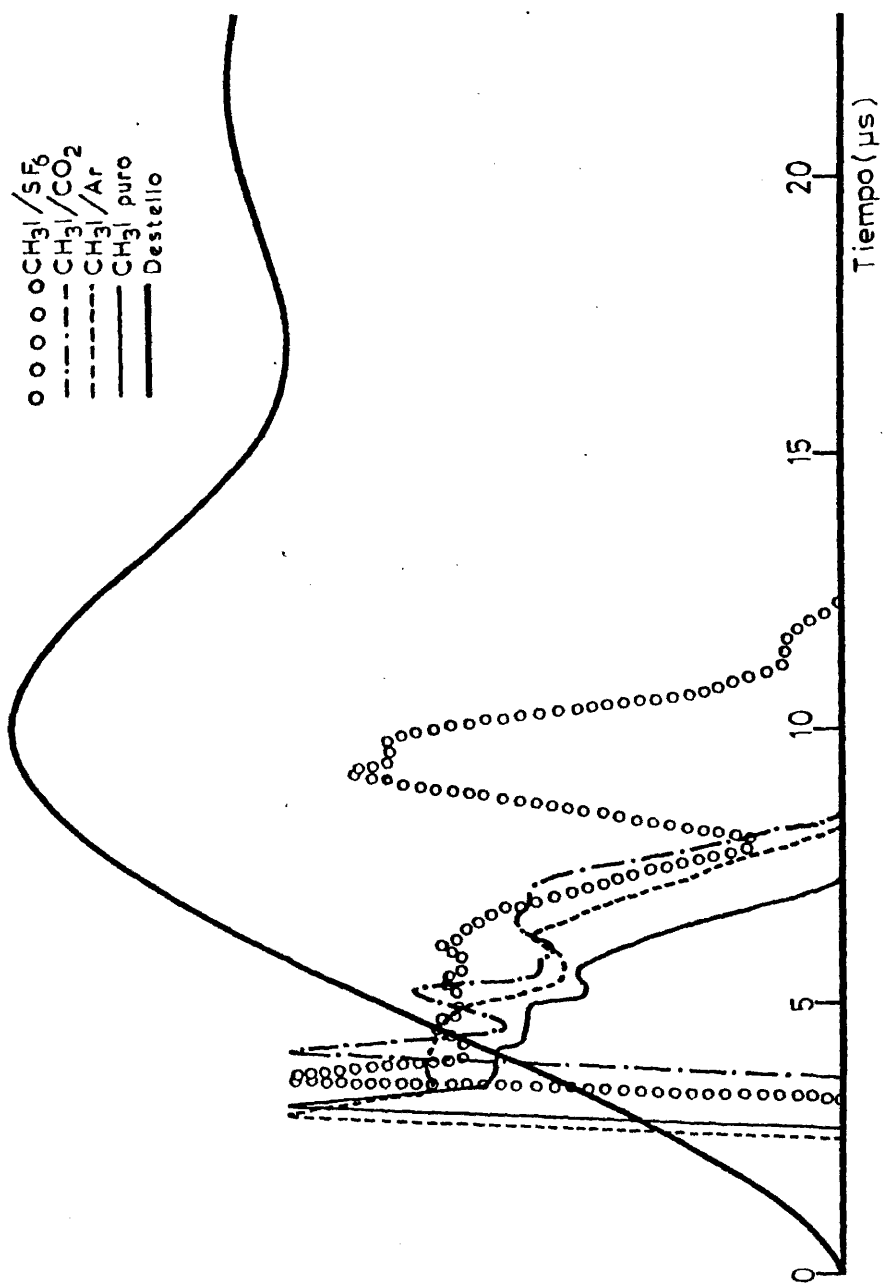


Figura 49.- Comportamiento temporal de la emisión láser y del destello. Proporción de las mezclas, 1:9. Energía de descarga, 829 J. Longitud de onda de la radiación de bombeo,  $\lambda > 165$  nm.

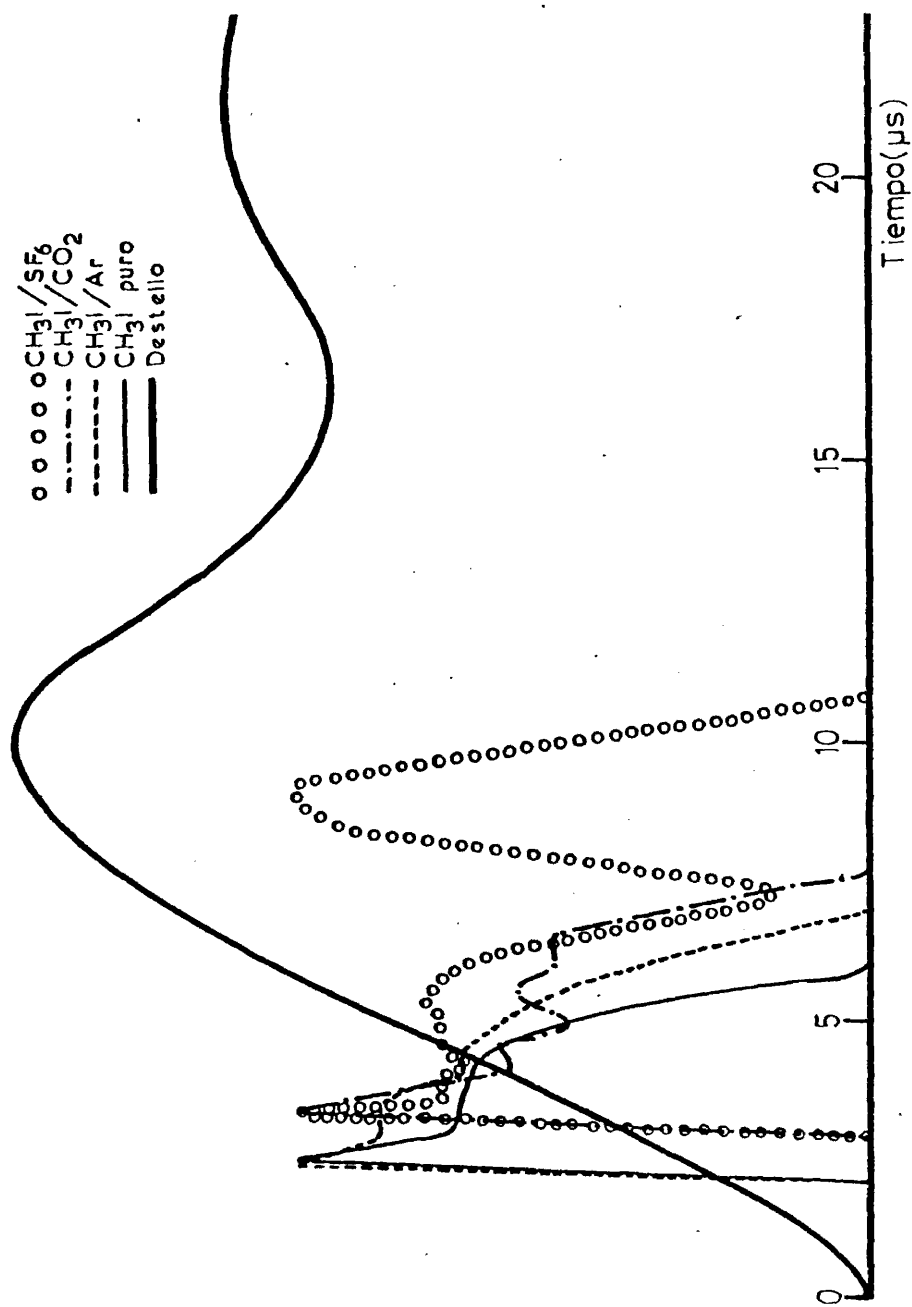


Figura 50.- Comportamiento temporal de la emisión láser y del destello. Proporción de las mezclas, 1:9. Energía de descarga, 1197 J. Longitud de onda de la radiación de bombeo,  $\lambda > 165$  nm.

una nueva serie de experimentos con una mezcla distinta, puesto que después del proceso de preparación de la nueva mezcla es necesario volver a ajustar la posición del tubo láser en el interior de la cavidad óptica, con el consiguiente reajuste de las posiciones del espejo focalizador de la señal láser sobre el detector y de éste último. El mismo razonamiento se puede aplicar para la intensidad del destello: pequeñas modificaciones en las posiciones relativas del detector y la lámpara de destello producen variaciones en el máximo de intensidad registrado. Lo que sí se mantiene aproximadamente constante a lo largo de los experimentos es la relación entre los valores de la intensidad máxima del destello a diversas energías de descarga. El cociente entre la intensidad máxima del destello a 1197 J de energía de descarga y dicha intensidad a 538 J de energía de descarga es, aproximadamente, 1,8 en todos los experimentos. Asimismo, se tiene el valor aproximado de 1,4 para el cociente entre la intensidad máxima del destello a 829 J de energía de descarga y a 538 J de energía de descarga.

Vamos a analizar a continuación con algo de detalle los resultados presentados, reseñando los hechos más significativos.

#### 4.2.2.1. Comienzo de la emisión láser

Vamos a considerar en primer lugar como afecta al comienzo de la emisión láser la variación de la presión parcial de cada gas diluyente a una energía determinada.

En las mezclas de  $\text{CH}_3\text{I}$  con Ar los tiempos de comienzo de la

emisión láser a una energía dada son siempre los mismos, independientemente de la presión parcial del Ar.

En las mezclas con  $\text{SF}_6$  en las proporciones 1:1 y 1:3 la emisión láser también comienza a tiempos iguales para energías de descarga iguales. El tiempo de comienzo de la señal se retrasa, por el contrario, cuando la proporción de la mezcla es 1:9.

Cuando el  $\text{CH}_3\text{I}$  se diluye con  $\text{CO}_2$ , el comienzo de la emisión láser a una energía determinada se retrasa al aumentar la concentración de  $\text{CO}_2$ . El retraso es especialmente notable cuando la proporción de la mezcla es 1:9.

Vamos a considerar a continuación el efecto sobre el tiempo de comienzo de la emisión láser de la variación del gas diluyente empleado, a una presión dada y una energía de descarga determinada, comparando los resultados con los obtenidos cuando se emplea  $\text{CH}_3\text{I}$  puro.

Se tiene que el empleo de gases moderadores no produce variaciones notables con respecto al caso en que se emplea  $\text{CH}_3\text{I}$  puro en el comienzo de la emisión láser para las mezclas 1:1 y 1:3 a energías de descarga de 829 y 1197 J, mientras que la señal se adelanta ligeramente a 538 J de energía de descarga. Cuando la mezcla es 1:9, el Ar mantiene el comienzo de la señal sin variación con respecto al caso  $\text{CH}_3\text{I}$  puro; la utilización de  $\text{CO}_2$  la retrasa, especialmente a bajas energías de descarga; el  $\text{SF}_6$  adelanta algo dicho comienzo a 538 J y lo retrasa a 829 y 1197 J de energía de descarga.

Un dato interesante es que la emisión láser retarda su comienzo al disminuir la energía de descarga en todos los casos, independientemente de la mezcla utilizada.

Conviene, por último, señalar que estos resultados confirman claramente el resultado ya reseñado en la sección 4.1.2 acerca de la existencia de un umbral de intensidad de destello por debajo del cuál la acción láser no puede ocurrir.

#### 4.2.2.2. Duración de la emisión láser

Al igual que en el apartado anterior vamos a considerar en primer lugar como afecta a la duración de la emisión láser la variación de la presión parcial de cada gas diluyente a una energía determinada.

A partir de los resultados reseñados en las figuras 42-50 o en las tablas IV-XIII se comprueba inmediatamente que cuando el gas diluyente es Ar o  $\text{SF}_6$  la duración de la emisión láser aumenta con la proporción del gas diluyente empleado y, dentro de una mezcla determinada, aumenta asimismo al disminuir la energía de descarga (efecto que también ocurre cuando se emplea  $\text{CH}_3\text{I}$  puro). Como el tiempo al que el destello alcanza su valor máximo es el mismo en todos los casos, el disminuir la energía de descarga supone descargar menos energía en el mismo tiempo, de modo que podemos concluir que la duración de la emisión láser aumenta al disminuir la velocidad con que se suministra la energía.

Cuando se emplea  $\text{CO}_2$  como gas diluyente aumenta la duración de la señal con la proporción del gas en la mezcla a 1197 J de energía de descar

ga, pero la señal se estabiliza o disminuye algo su duración a 538 y 829 J de energía de descarga. Al aumentar la energía de descarga disminuye la duración de la señal en todos los casos excepto en el correspondiente a la mezcla 1:3 en que la duración de la señal es mayor a 829 J que a 538 J de energía de descarga.

Vamos a considerar a continuación el efecto que ejerce sobre la duración de la emisión láser el variar el gas diluyente empleado a una presión dada y energía de descarga determinada.

a) Mezclas 1:1.

La duración de la emisión láser a una energía de descarga determinada es aproximadamente la misma independientemente del gas diluyente empleado. Esta duración coincide con la del caso en que se emplea  $\text{CH}_3\text{I}$  puro a 889 y 1197 J de energía de descarga, y es mayor que la de dicho caso a 538 J.

b) Mezclas 1:3.

A las energías de descarga de 1197 y 829 J el Ar y el  $\text{CO}_2$  ejercen el mismo efecto de ensanchamiento de la señal láser, de modo que la duración de esta es la misma con ambos gases diluyentes. A 538 J de energía de descarga la duración de la señal cuando se usa  $\text{CO}_2$  como diluyente es menor que cuando se utiliza Ar.

Cuando el gas diluyente empleado es  $\text{SF}_6$  el efecto sobre la duración de la señal láser es espectacular. La duración de la señal láser aumenta notablemente, lo que es debido fundamentalmente a un importante

retraso en el final de la misma. Como se comprueba sin más que mirar las figuras la forma de la señal también ha experimentado una variación con respecto a los casos anteriores. La señal consta ahora de dos partes claramente diferenciadas: una primera parte similar a la señal que se obtiene cuando se emplean como diluyentes Ar o  $\text{CO}_2$  seguida de una segunda parte en la que hay un brusco incremento de intensidad formándose un pico que, a bajas energías de descarga, adquiere una intensidad próxima a la máxima de la señal.

c) Mezclas 1:9

A 1197 J de energía de descarga la duración de la señal es la misma cuando se emplea Ar que cuando se emplea  $\text{CO}_2$  como gas diluyente. A las energías de descarga de 538 y 829 J la duración de la señal es mayor cuando el gas diluyente es Ar que cuando es  $\text{CO}_2$ , lo que es motivado fundamentalmente por el retraso en el comienzo de la señal cuando se emplea  $\text{CO}_2$ , puesto que la señal termina a tiempos iguales con ambos gases diluyentes.

Al igual que en el caso 1:3, el usar  $\text{SF}_6$  como gas diluyente produce un importante incremento en la duración de la emisión láser. La forma de la señal es similar a la ya descrita en el caso 1:3, con la única diferencia de que la segunda parte de la misma consta ahora de dos picos en vez de uno, tanto más diferenciados cuanto menor es la energía de descarga (todo ocurre como si el pico único que aparece en el caso 1:3 se desdoblase en dos).

Podemos resumir lo dicho en este apartado como sigue. Siempre que se emplea  $\text{CH}_3\text{I}$  diluido con cualquiera de los gases indicados (Ar,

$\text{CO}_2$ ,  $\text{SF}_6$ ) en proporción  $\text{CH}_3\text{I}$ /gas diluyente 1:3 o mayor, aumenta la duración de la emisión láser con respecto al caso en que se emplea  $\text{CH}_3\text{I}$  puro. Cuando la mezcla es 1:1 la señal aumenta su duración a 538 J de energía de descarga, pero permanece invariante a energías de descarga mayores (con  $\text{CO}_2$  a 829 J disminuye ligeramente). La presencia del  $\text{SF}_6$  en proporciones 1:3 y 1:9 origina importantes incrementos en la duración de la emisión láser. La mayor duración de la señal se obtiene con  $\text{SF}_6$  como gas diluyente en la proporción 1:9 a la energía de descarga de 538 J. Conviene también señalar que en todos los casos el aumento de la duración de la emisión láser se debe fundamentalmente a un retraso en la terminación de la misma.

#### 4.2.2.3. Primer y último pico de la señal láser

El primer pico de la emisión láser aparece siempre a 0,4 ó 0,5  $\mu\text{s}$  del comienzo de la señal, independientemente del tipo de mezcla empleada o de la energía suministrada. Este primer pico es asimismo el más intenso en todos los casos.

El último pico de la emisión láser representa el comienzo de la extinción de la misma. Esta, pues, íntimamente relacionado con el final de la emisión láser. En particular, ocurre tanto más tarde cuanto mayor es la proporción de gas diluyente empleado y cuanto menor es la energía de descarga utilizada.

#### 4.2.2.4. Operación láser repetitiva

Cuando se utiliza  $\text{SF}_6$  como diluyente en las proporciones 1:3 y



1:9 se obtienen varias emisiones láser en descargas sucesivas sin necesidad de renovar la mezcla presente en la cámara de reacción. Conviene señalar que en la bibliografía se había reseñado la carencia de operación láser repetitiva cuando se utilizaba como sustrato yoduro de metilo [131], [103]. En cada una de las tablas XIV - XVIII se presentan los resultados correspondientes a la evolución a lo largo de un mismo experimento de las características de la emisión láser en descargas sucesivas. En las mezclas  $\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$  1:9 se obtienen un total de 4,3 y 2 emisiones láser consecutivas a 538, 829 y 1197 J de energía de descarga, respectivamente. Cuando la mezcla es 1:3 se obtienen 3 y 2 señales láser consecutivas a 538 y 829 J, respectivamente, y una única emisión láser (o sea, carencia de operación repetitiva) cuando la energía de descarga fue de 1197 J. Tanto cuando la mezcla  $\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$  fue en la proporción 1:1 como en todos los casos en que el gas diluyente fue Ar o  $\text{CO}_2$ , ó cuando se uso  $\text{CH}_3\text{I}$  puro, únicamente se obtiene emisión láser con sustancia fresca en la cámara de reacción, siendo necesario reponer la misma cada vez que se efectúa una descarga.

En las figuras 51-55 se representa la evolución de la forma de la señal láser al ir efectuando descargas sucesivas. En estas figuras se toma como intensidad unidad la correspondiente al pico principal de la primera emisión láser. Se comprueba que la señal va reduciendo su duración (retrasándose el comienzo y adelantándose, en general, el final) y disminuyendo ligeramente su valor máximo de intensidad en las descargas sucesivas. Es interesante notar que tanto en los casos de mezclas  $\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$  en la proporción 1:3 como en los casos en que la proporción es 1:9 la intensidad umbral del destello a que aparece el último láser es muy simi-

TABLA XIV

Operación repetitiva láser. Características de las emisiones sucesivas,  $\text{CH}_3\text{I} + \text{SF}_6$ , 1:3.  
Energía de descarga: 538 J.

	EMISIONES LASER CONSECUTIVAS			
	1ª DESCARGA	2ª DESCARGA	ULTIMA DESCARGA	ULTIMA DESCARGA
DESTELLO				
	Tiempo de subida ( $\mu\text{s}$ )	10,0	10,0	10,0
	Intensidad máxima (voltios) <sup>a)</sup>	0,35	0,35	0,35
EMISION				
	Comienzo de la señal ( $\mu\text{s}$ )	3,2	3,6	4,7
	Final de la señal ( $\mu\text{s}$ )	11,8	8,1	7,6
	Duración total de la emisión ( $\mu\text{s}$ )	8,6	4,5	2,9
LASER	PRIMER Intensidad (voltios) <sup>a)</sup>	1,6	1,5	1,3
	PICO c) Tiempo ( $\mu\text{s}$ ) <sup>b)</sup>	3,7	4,1	5,4
	ULTIMO Intensidad (voltios) <sup>a)</sup>	0,3	0,5	0,3
	PICO Tiempo ( $\mu\text{s}$ ) <sup>b)</sup>	10,5	6,5	6,6
INTENSIDAD DEL DESTELLO EN EL UMBRAL DEL LASER (voltios) <sup>a)</sup>		0,16	0,10	0,18

a) Tal como se registra en el osciloscopio.

b) Tiempo al que ocurre el pico indicado.

c) El primer pico es también el más intenso.

d) La última emisión láser es la tercera.

TABLA XV

Operación repetitiva láser. Características de las emisiones sucesivas,  $\text{CH}_3\text{I} + \text{SF}_6$  1:3.  
Energía de descarga: 829 J.

		EMISIONES LASER CONSECUTIVAS	
		1ª DESCARGA	2ª DESCARGA d)
DESTELLO	Tiempo de subida (us)	10,0	10,0
	Intensidad máxima (voltios) a)	0,47	0,47
EMISION	Comienzo de la señal (us)	2,7	3,6
	Final de la señal (us)	11,2	8,3
LASER	Duración total de la emisión (us)	8,5	4,7
	PRIMER Intensidad (voltios) a)	1,8	1,7
	PICO c) Tiempo (us) b)	3,1	4,1
	ULTIMO Intensidad (voltios) a)	1,3	0,4
	PICO Tiempo (us) b)	10,0	7,2
	INTENSIDAD DEL DESTELLO EN EL UMBRAL DEL LASER (voltios) a)	0,097	0,15

a) Tal como se registra en el osciloscopio.

b) Tiempo al que ocurre el pico indicado.

c) El primer pico es también el más intenso.

d) La segunda emisión láser es también la última.

TABLA XVI

Operación repetitiva láser. Características de las emisiones sucesivas,  $\text{CH}_3\text{I} + \text{SF}_6$ , 1:9.  
Energía de descarga: 538 J.

		EMISIONES LASER CONSECUTIVAS	
		1ª DESCARGA	2ª DESCARGA ULTIMA DESCARGA d)
DESTELLO	Tiempo de subida (us) Intensidad máxima (voltios) a)	10,0 0,37	10,0 0,37
EMISION  LASEP	Comienzo de la señal (us)	3,4	3,9
	Final de la señal (us)	13,1	12,9
	Duración total de la emisión(us)	9,7	9,0
	PRIMER PICO c)	1,2	1,1
	Intensidad (voltios) a)	3,8	4,5
	Tiempo (us) b)	0,5	0,6
	ULTIMO PICO	12,2	11,2
	Intensidad (voltios) a)		- e)
INTENSIDAD DEL DESTELLO EN EL UMBRAL DEL LASER (voltios) a)		0,12	0,15
			0,25

a) Tal como se registra en el osciloscopio.

b) Tiempo al que ocurre el pico indicado.

c) El primer pico es también el más intenso.

d) La última emisión láser es la cuarta.

e) La señal solo tiene un pico.

TABLA XVII

Operación repetitiva láser. Características de las emisiones sucesivas,  $\text{CH}_3\text{I} + \text{SF}_6$ , 1:9.  
Energía de descarga: 829 J.

		EMISIONES LASER CONSECUTIVAS			
		1ª DESCARGA	2ª DESCARGA	ULTIMA DESCARGA <sup>d)</sup>	
DESTELLO	Tiempo de subida (µs) Intensidad máxima (voltios) <sup>a)</sup>	10,0 0,51	10,0 0,51	10,0 0,51	10,0 0,51
EMISION	Comienzo de la señal (µs) Final de la señal (µs) Duración total de la emisión (µs)	3,2 11,9 8,7	3,9 12,3 8,4	3,0 7,7 2,7	5,0 7,7 2,7
LASER	PRIMER PICO <sup>c)</sup>	3,2	3,0	2,1	2,1
	Tiempo (µs) <sup>b)</sup>	3,7	4,4	5,7	5,7
	ULTIMO PICO	0,2	0,2	1,0	1,0
	Tiempo (µs) <sup>b)</sup>	11,5	12,2	6,7	6,7
INTENSIDAD DEL DESTELLO EN EL UMBRAL DEL LASER (voltios) a)		0,14	0,19	0,26	0,26

- a) Tal como se registra en el osciloscopio  
b) Tiempo al que ocurre el pico indicado.  
c) El primer pico es también el más intenso.  
d) La última emisión láser es la tercera.

TABLA XVIII

Operación repetitiva láser. Características de las emisiones sucesivas, CH<sub>3</sub>I + SF<sub>6</sub>, 1:9.  
Energía de descarga: 1197 J.

		EMISION LASER CONSECUTIVAS	
		PRIMERA DESCARGA	SEGUNDA DESCARGA d)
DESTELLO	Tiempo de subida (μs)	10,0	10,0
	Intensidad máxima (voltios) a)	0,66	0,66
EMISION  LASER	Comienzo de la señal (μs)	2,9	4,1
	Final de la señal (μs)	10,8	11,7
	Duración total de la emisión (μs)	7,9	7,6
	PRIMER Intensidad (voltios) a)	3,8	2,8
	PICO c) Tiempo (μs) b)	3,3	4,6
	ULTIMO Intensidad (voltios) a)	4,0	2,5
	PICO Tiempo (μs) b)	9,0	10,5
	INTENSIDAD DEL DESTELLO EN EL UMBRAL DEL LASER (voltios) a)	0,14	0,26

a) Tal como se registra en el osciloscopio.

b) Tiempo al que ocurre el pico indicado.

c) El primer pico es también el más intenso.

d) La segunda emisión láser es también la última.

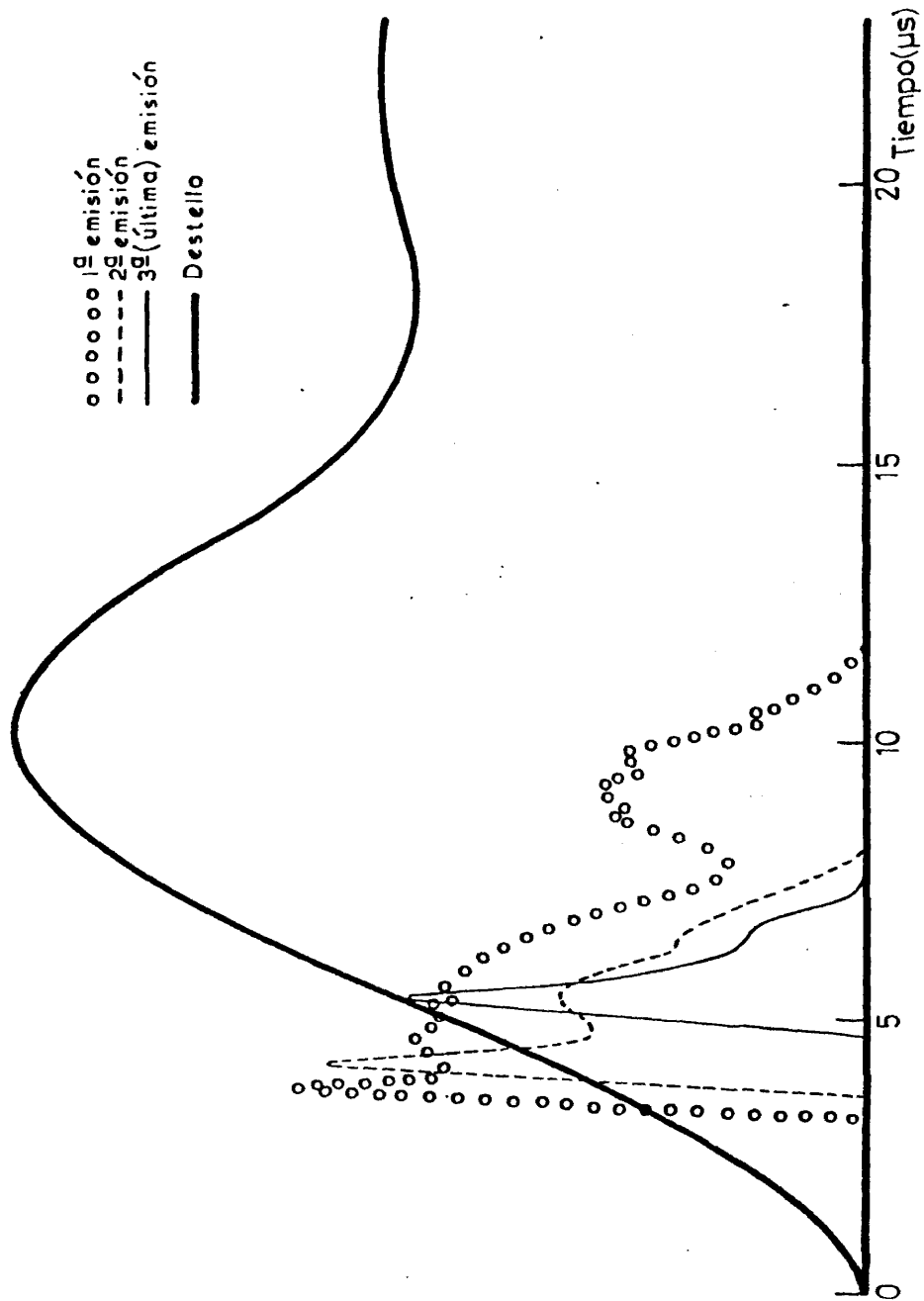


Figura 51.- Emisiones láser consecutivas. Mezcla  $CH_3I/SF_6$  1:3. Energía de descarga, 538 J. Longitud de onda de la radiación de bombeo,  $\lambda > 165$  nm.

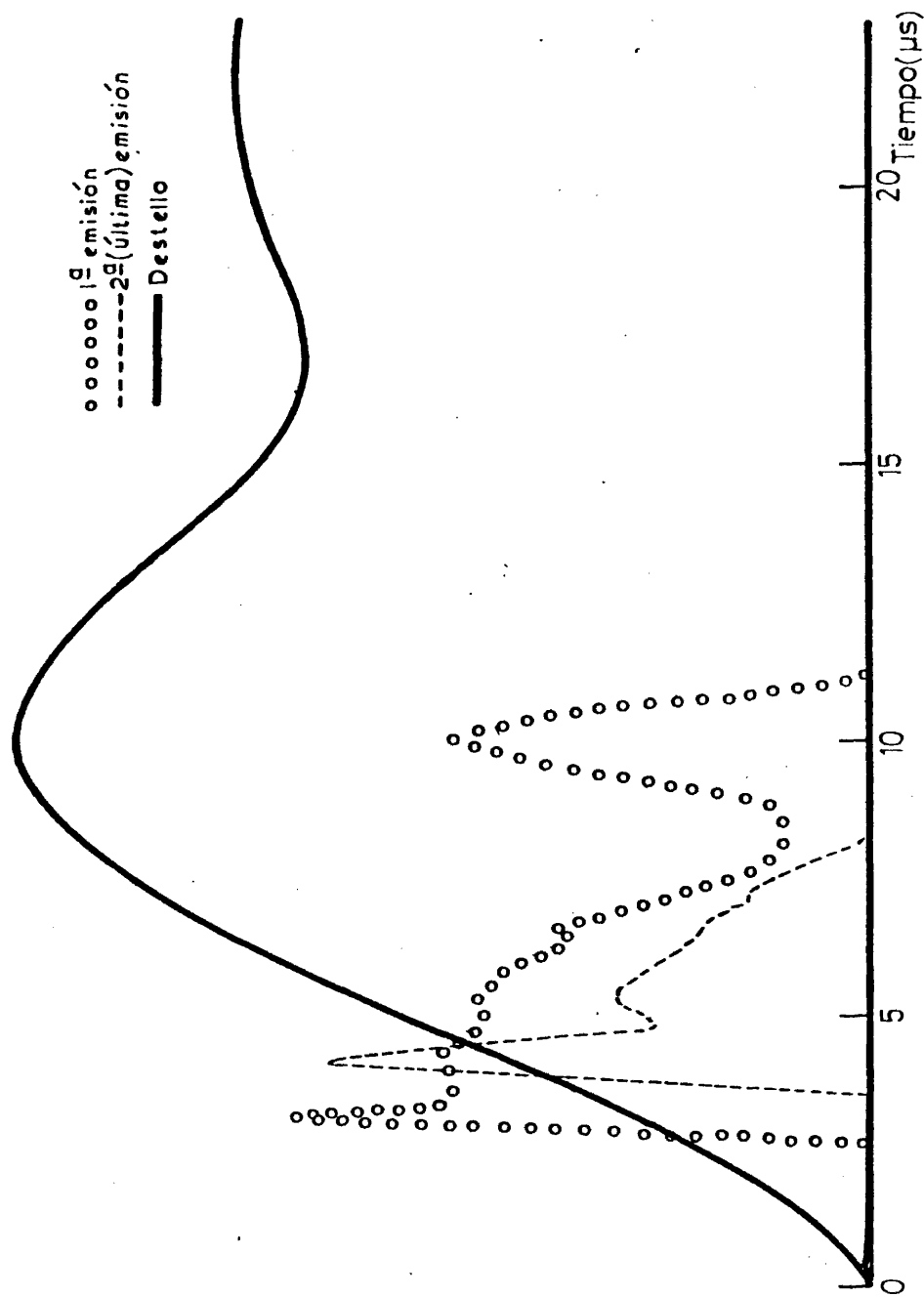


Figura 52.- Emisiones láser consecutivas. Mezcla  $\text{CH}_3\text{I}/\text{St}_6$  1:3. Energía de descarga, 829 J. Longitud de onda de la radiación de bombeo,  $\lambda > 165 \text{ nm}$ .



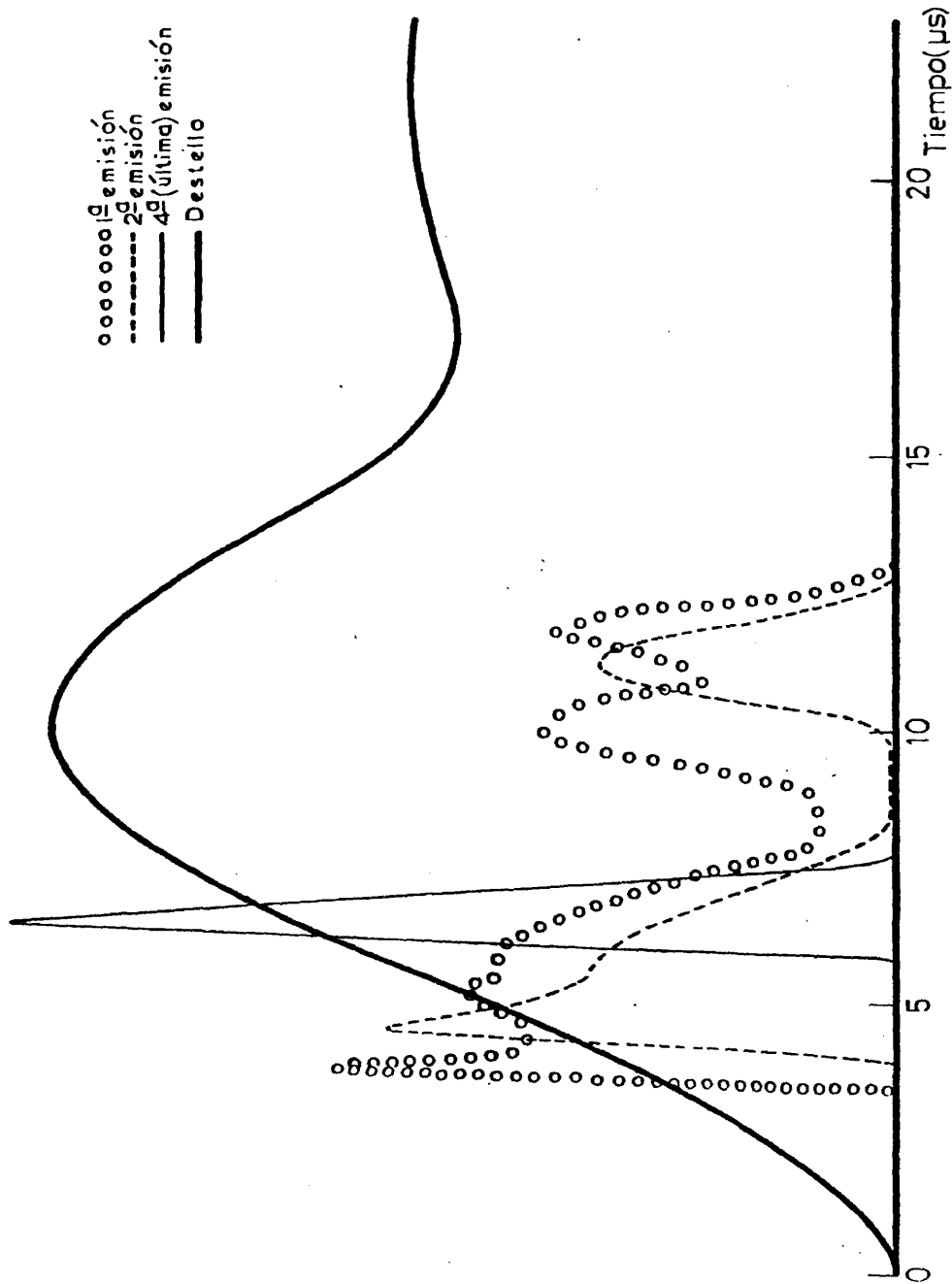


Figura 53.- Emisiones láser consecutivas. Mezcla  $\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$  1:9. Energía de descarga, 538 J. Longitud de onda de la radiación de bombeo,  $\lambda > 165 \text{ nm}$ .

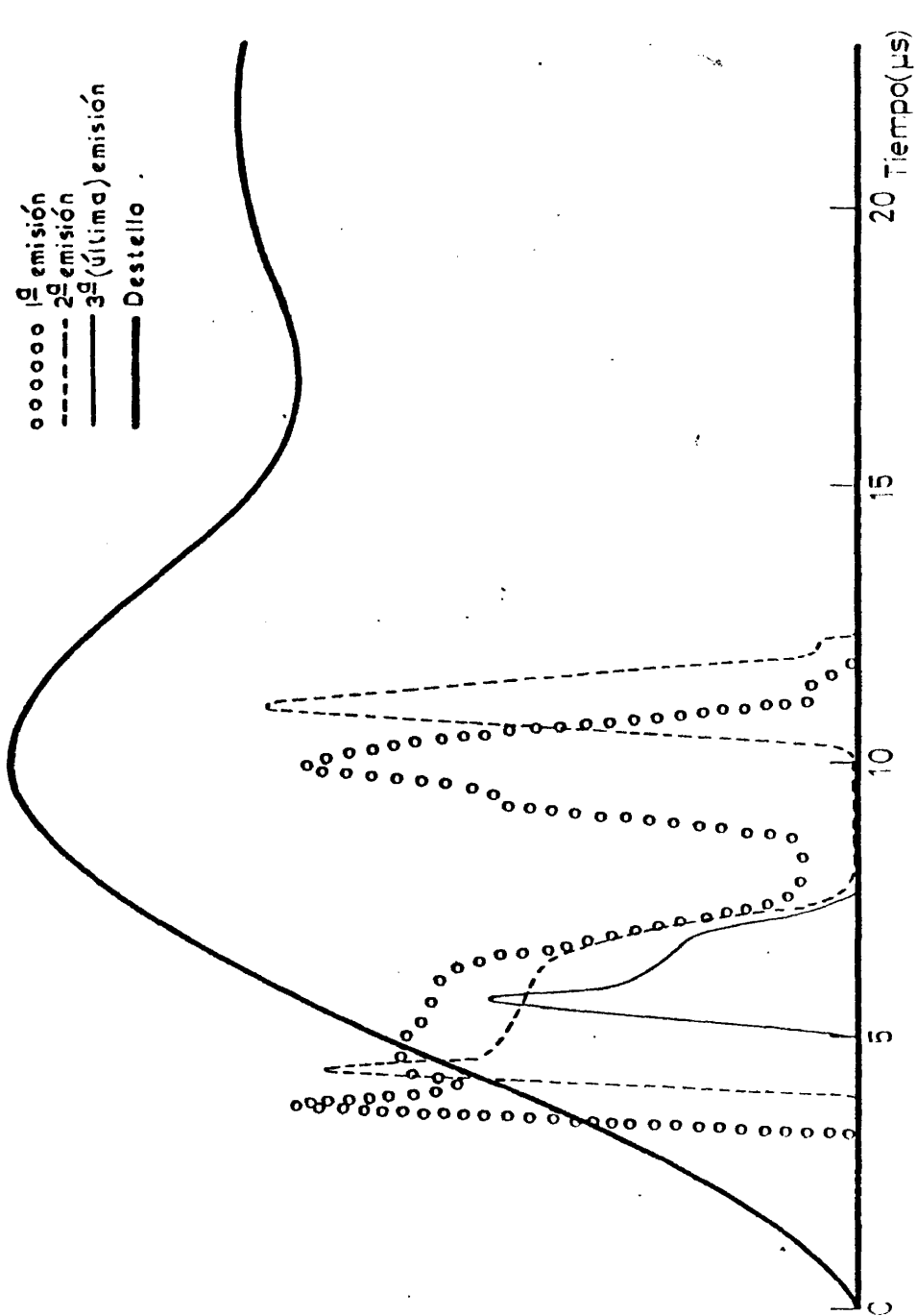


Figura 54.- Emisiones láser consecutivas. Mezcla  $\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$  1:9. Energía de descarga, 829 J. Longitud de onda de la radiación de bombeo,  $\lambda > 165 \text{ nm}$ .

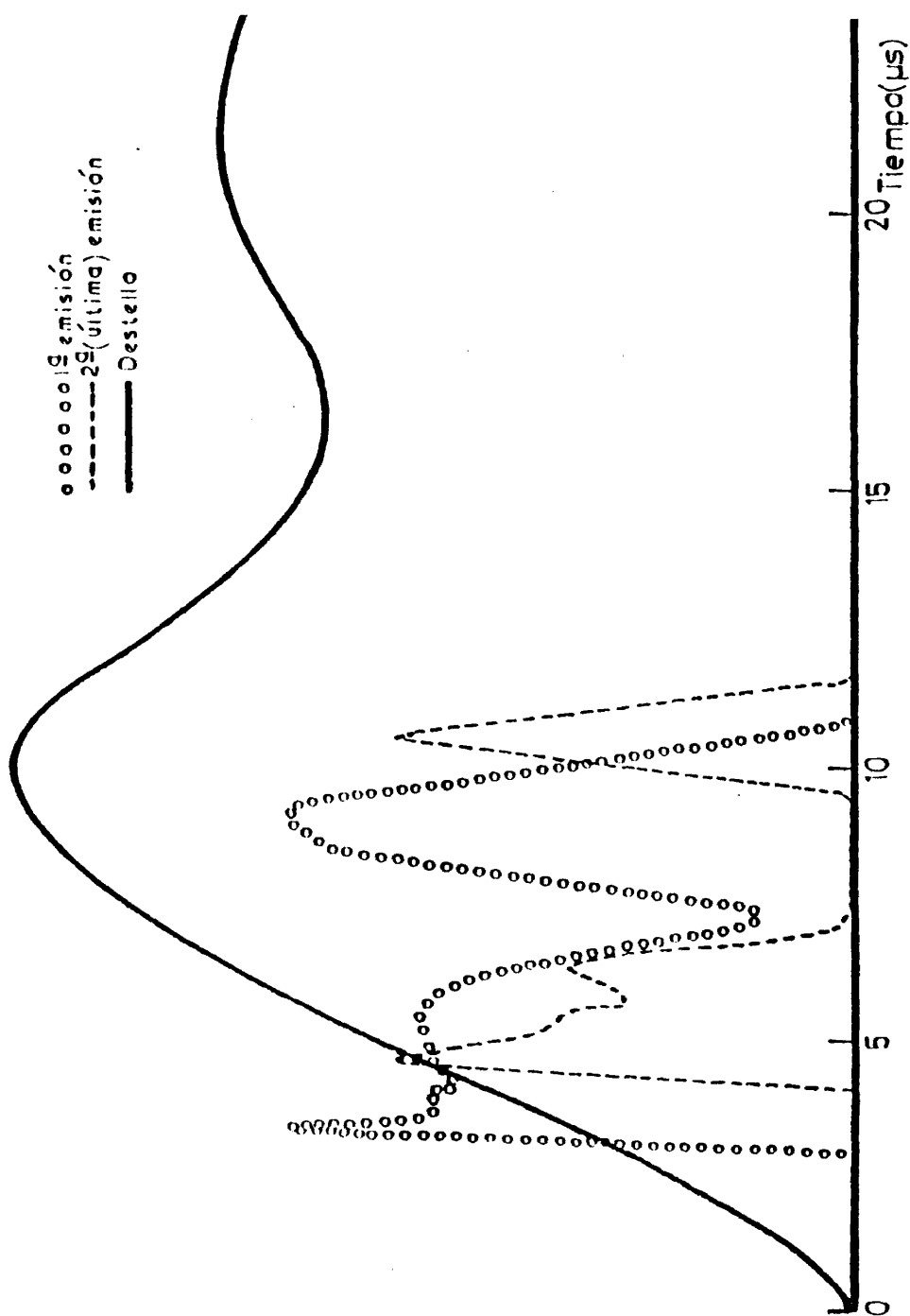


Figura 55.- Emisiones láser consecutivas. Mezcla  $\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$  1:9. Energía de descarga, 1197 J. Longitud de onda de la radiación de bombeo,  $\lambda > 165$  nm.

lar (Tablas XIV y XV para la proporción 1:3 y XVI-XVIII para la proporción 1:9).

#### 4.3. INFLUENCIA DE LA LONGITUD DE ONDA DE LA RADIACION DE BOMBEO

Los resultados presentados en la sección anterior ponen de manifiesto que la presencia de  $\text{SF}_6$  como gas diluyente en proporciones significativas se traduce en un retraso notable en la terminación de la emisión láser así como en la aparición de operación láser repetitiva. Pensamos que la responsabilidad de este hecho podría radicar en la alta eficiencia del  $\text{SF}_6$  como desactivador vibracional (no puede ser debido simplemente al efecto del  $\text{SF}_6$  como moderador del calentamiento del  $\text{CH}_3\text{I}$  durante la fotólisis puesto que la presencia de Ar, que tiene el mismo efecto de rebajar la temperatura del sustrato, no afecta a la emisión láser en la forma en que lo hace la presencia del  $\text{SF}_6$ ). El  $\text{CH}_3\text{I}$  tiene una banda de absorción centrada en 254 nm, así como estrechas e intensas bandas de absorción en torno y por debajo de 200 nm (apartado 2.2.1). La fotólisis del  $\text{CH}_3\text{I}$  es, ciertamente, dependiente de la longitud de onda. Los resultados de Harris y Willard [114] permiten concluir que la fotólisis del  $\text{CH}_3\text{I}$  a 184,9 nm tiene un rendimiento de formación de radicales metilo vibracionalmente excitados significativamente más alto que la fotólisis a 253,7 nm. Asimismo, los resultados de espectroscopía de fotofragmentación de Riley y Wilson [115] indican claramente que a 260 nm el exceso de energía del radical metilo es predominantemente translacional. Estos datos parecen indicar que la radiación de bombeo de longitud de onda por debajo de 200 nm es la principal responsable de la aparición de radicales vibracionalmente excitados. Si la actuación del  $\text{SF}_6$  consiste en termalizar estos radicales calientes, los efectos observados cuando se dilu

ye el  $\text{CH}_3\text{I}$  en  $\text{SF}_6$  deberían aparecer en forma más acusada si se filtrara la radiación de bombeo impidiendo así que las longitudes de onda cortas alcancen el sustrato  $\text{CH}_3\text{I}$  durante la fotólisis. Con esta idea se ha procedido a efectuar experimentos en los que se filtra la radiación de bonbeo por debajo de aproximadamente 220 nm.

#### 4.3.1. Experimentos con lámparas de destello en paralelo y fil- tro de vidrio

Se utilizó en primer lugar como filtro un tubo de Vycor de 28 cm de longitud, 2,6 cm de diámetro interno y 2 mm de espesor. El porcentaje de transmisión de este tubo es del 70% a 260 nm, 5% a 220 nm y 0% a 210 nm [227]. A fin de poder utilizar el tubo de Vycor como filtro es necesario usar el montaje de lámpara de destello paralela al tubo láser (apartado 3.2), situando el tubo de Vycor rodeando a la lámpara de destello. Las características del destello con esta lámpara son las descritas en el apartado 3.2 (anchura a media altura, 14  $\mu\text{s}$ ; tiempo de subida, 8  $\mu\text{s}$ ). Como la lámpara es más larga que el tubo de Vycor, la parte que sobresale de la misma se cubre con papel de aluminio y no contribuye al bombeo. Se utilizó tubo láser de 14 mm de diámetro interno. Al igual que en los experimentos de la sección 4.2 las ventanas usadas para cerrar a ambos lados la célula láser fueron cubreobjetos de microscopio. La energía de descarga utilizada fue 538 J y el sustrato  $\text{CH}_3\text{I}$  puro. Se obtuvo emisión láser filtrando y sin filtrar la radiación de bombeo a fin de comparar ambas señales. Las señales así obtenidas fueron idénticas entre sí, independientemente de que se filtre o no la radiación de bombeo. La razón de ésto es obvia en cuanto consideramos que, por ser el montaje

en paralelo, entre la lámpara de destello y el tubo láser hay aire (4 cm en nuestro caso). El oxígeno presente en el aire absorbe fuertemente la radiación de longitud de onda por debajo de 200 nm (para radiación de longitud de onda de 180 nm 5 cm de aire hacen decaer la intensidad incidente en un factor  $1/e$  [201]). En consecuencia, el aire presente entre el tubo láser y la lámpara de destello ya actúa como filtro, de modo que la acción del tubo de Vycor es redundante. Queda, pues, claramente de manifiesto que el montaje en paralelo, que es el usualmente utilizado de acuerdo con la bibliografía, no proporciona información acerca de la posible influencia sobre la operación láser de las longitudes de onda cortas (por debajo de 200 nm). A fin de obtener la información que deseamos es necesario realizar el experimento con el dispositivo de lámpara concéntrica al tubo láser. A estos efectos se diseñó un tipo de lámpara concéntrica que permite filtrar la radiación de bombeo. Este tipo de lámpara y los resultados experimentales obtenidos con ella se describen en el apartado siguiente.

#### 4.3.2. Experimentos con lámpara de destello concéntrica al tubo láser y solución filtrante

##### 4.3.2.1. Dispositivo experimental

Como ya se indicó al final del apartado anterior, a fin de poder llevar a cabo los experimentos filtrando la radiación de bombeo se hizo necesario diseñar un nuevo dispositivo de lámpara de destello concéntrica al tubo láser. Este nuevo dispositivo consta de tres tubos concéntricos. El tubo más interior, de 0,75 cm de diámetro interno y 0,93 cm

de diámetro externo, es de cuarzo Spectrosil (Thermal Syndicate) y constituye la célula láser, tal como se describió en el apartado 3.1. Un segundo tubo de Spectrosil, concéntrico al anterior, tiene 48 cm de longitud, 1,4 cm de diámetro interno y 1,6 cm de diámetro externo. La cámara entre estos dos tubos puede ser evacuada o llenada con filtros líquidos. El tercer y último tubo, concéntrico a su vez a los anteriores, es de Pyrex, de 40 cm de largo y 3,2 cm de diámetro interno. La cámara entre este tubo y el segundo citado se rellena con 13 mm de Xenon y forma la lámpara de destello. Los electrodos son del mismo tipo que los de las lámparas concéntricas usadas hasta ahora y ya descritos en el apartado 3.2. En figura 56 se representa esquemáticamente el dispositivo descrito.

Con una capacidad total del sistema de bombeo de  $8 \mu\text{F}$ , las características temporales del destello son independientes del voltaje de carga utilizado y muy similares a las del destello que se obtenía con las lámparas concéntricas simples en los experimentos descritos en la sección 4.2 (anchura a media altura,  $33 \mu\text{s}$ ; tiempo de subida,  $10,5 \mu\text{s}$ ; tiempo al que se alcanza el segundo máximo,  $22 \mu\text{s}$ ; Figuras 57-59). En cambio, la altura del segundo máximo del destello es ahora mayor, alcanzando valores próximos a los del primer máximo (comparar el destello de figuras 42-50 con el de figuras 57-59).

El dispositivo experimental es el mismo ya descrito en la sección 4.2.1, con la única modificación de sustituir la lámpara concéntrica simple empleada entonces por la que acabamos de describir. Se hicieron experimentos con vacío (mejor que  $10^{-4}$  Torr) en la cámara situada entre la lámpara de destello y el tubo láser y con una solución filtrante

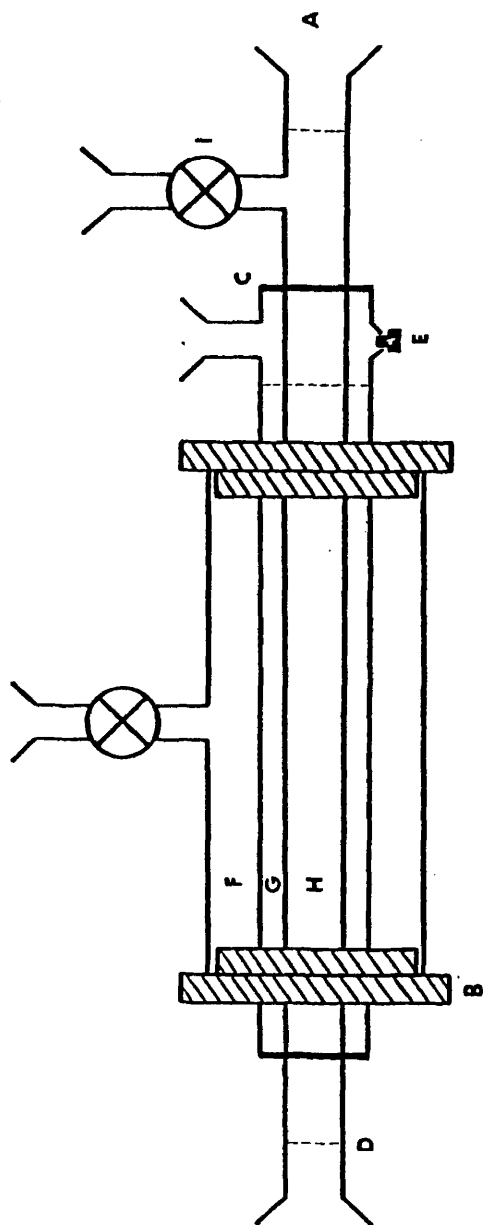


Figura 56.- Dispositivo de lámpara de destello concéntrica al tubo láser provista de una cavidad intermedia: A, r  tulas de vidrio; B, electrodos de acero inoxidable; C, placas de acero inoxidable pegadas al tubo con Araldite; D, uni  n cuarzo vidrio(pegada con Araldite); E, tap  n de goma adecuado para soportar vac  o; F, cavidad que act  a como l  mpara de destello, con tubo exterior de vidrio pvrex; G, cavidad intermedia limitada por tubos de cuarzo; H, tubo l  ser de cuarzo; I, llaves de tefl  n.



llenando dicha cámara. El filtro utilizado fue acetamida disuelta en agua destilada en la proporción 4 g/l. Este filtro no permite el paso de longitudes de onda por debajo de  $\sim 220$  nm ([201] y figura 60). Cuando se hace vacío en la cámara situada entre la lámpara de destello y el tubo láser el cuarzo Spectrosil permite el paso de radiación de longitud de onda mayor que  $\sim 165$  nm. Cuando se utiliza el filtro no es necesario renovarlo después de cada disparo: experimentos realizados muestran que el filtro se mantiene sin ninguna alteración después de 10 disparos consecutivos a 1197 J de energía de descarga.

Se han realizado experimentos con  $\text{CH}_3\text{I}$  puro y  $\text{CH}_3\text{I}$  diluido en Ar y  $\text{SF}_6$  en la proporción 1:9. Las energías de descarga usadas han sido de 538 y 1197 J. No se han realizado experimentos con  $\text{CH}_3\text{I}$  diluido en  $\text{CO}_2$  porque, de acuerdo con los resultados presentados en las secciones precedentes, el  $\text{CO}_2$  viene a representar un caso intermedio entre los del Ar y el  $\text{SF}_6$ . Por la misma razón tampoco se han efectuado experimentos a 829 J de energía de descarga o con mezclas de menor proporción que la 1:9.

#### 4.3.2.2. Resultados obtenidos

Los resultados obtenidos se suman en las tablas XIX-XXII y en las figuras 57-59. En las figuras, la escala de intensidades está en unidades arbitrarias y tanto los máximos de los destellos como los de las señales láser se han normalizado a la misma altura (cuando hay operación láser repetitiva se toma como unidad la intensidad de la primera emisión láser), siendo la escala del destello distinta de la correspondiente a la emisión láser. Las figuras proporcionan, pues, el comporta-

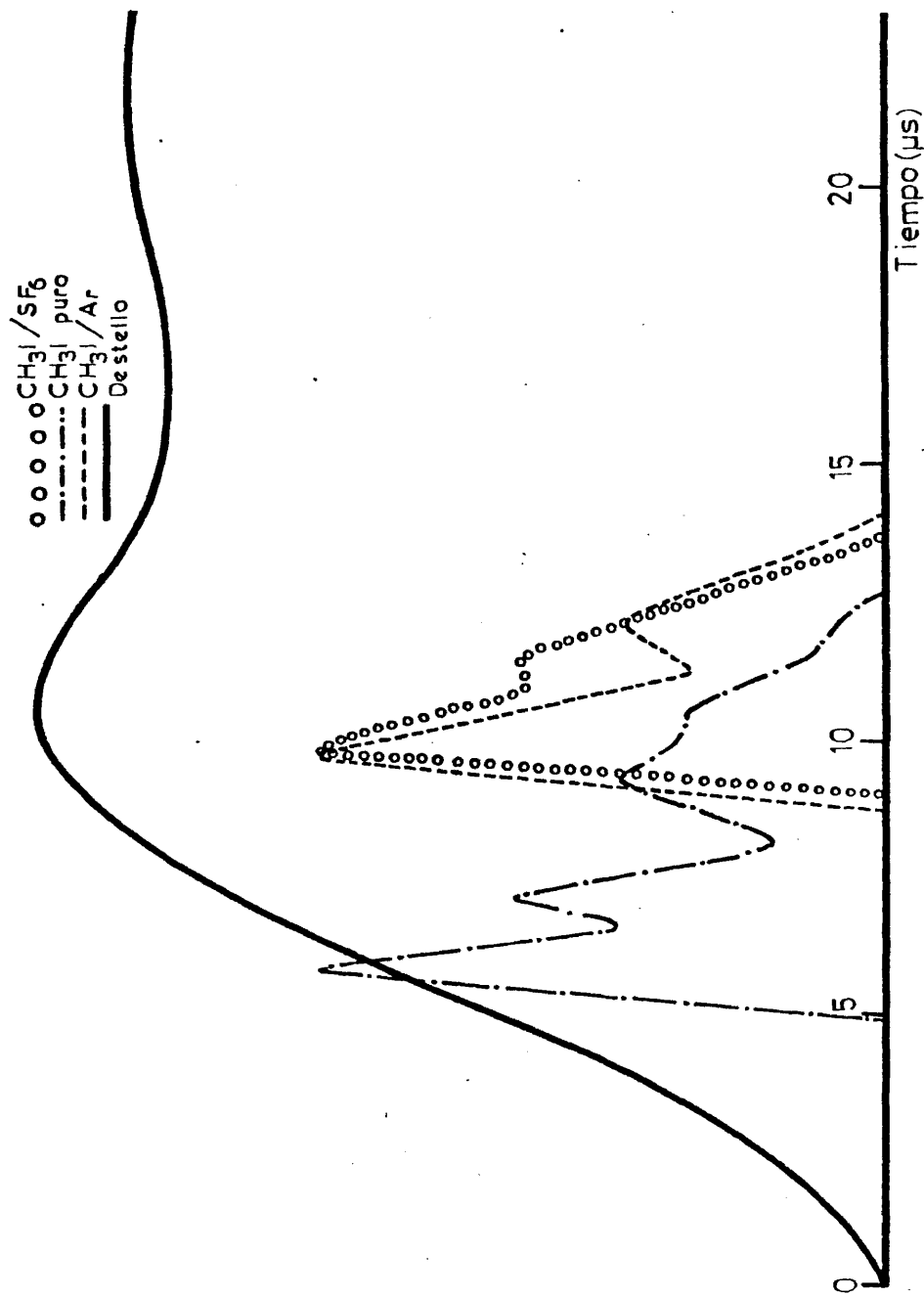


Figura 57.- Comportamiento temporal de la emisión láser y del destello. Proporción de las mezclas, 1:9. Energía de descarga, 538 J. Longitud de onda de la radiación de bombeo,  $\lambda > 220$  nm.

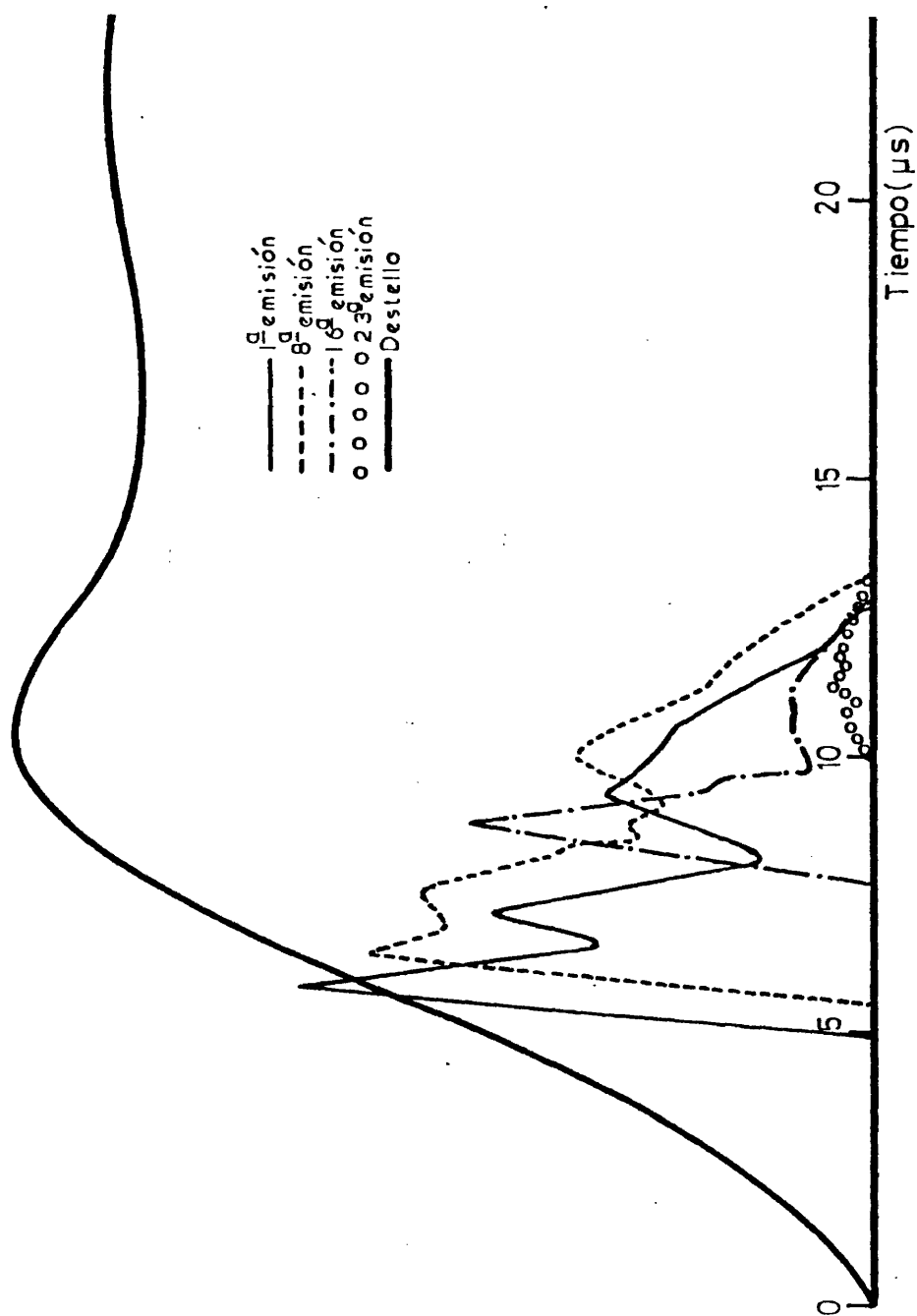


Figura 58.- Emisiones láser consecutivas.  $\text{CH}_3\text{I}$  puro. Energía de descarga, 538, J. Longitud de onda de la radiación de bombeo,  $\lambda > 220 \text{ nm}$ .

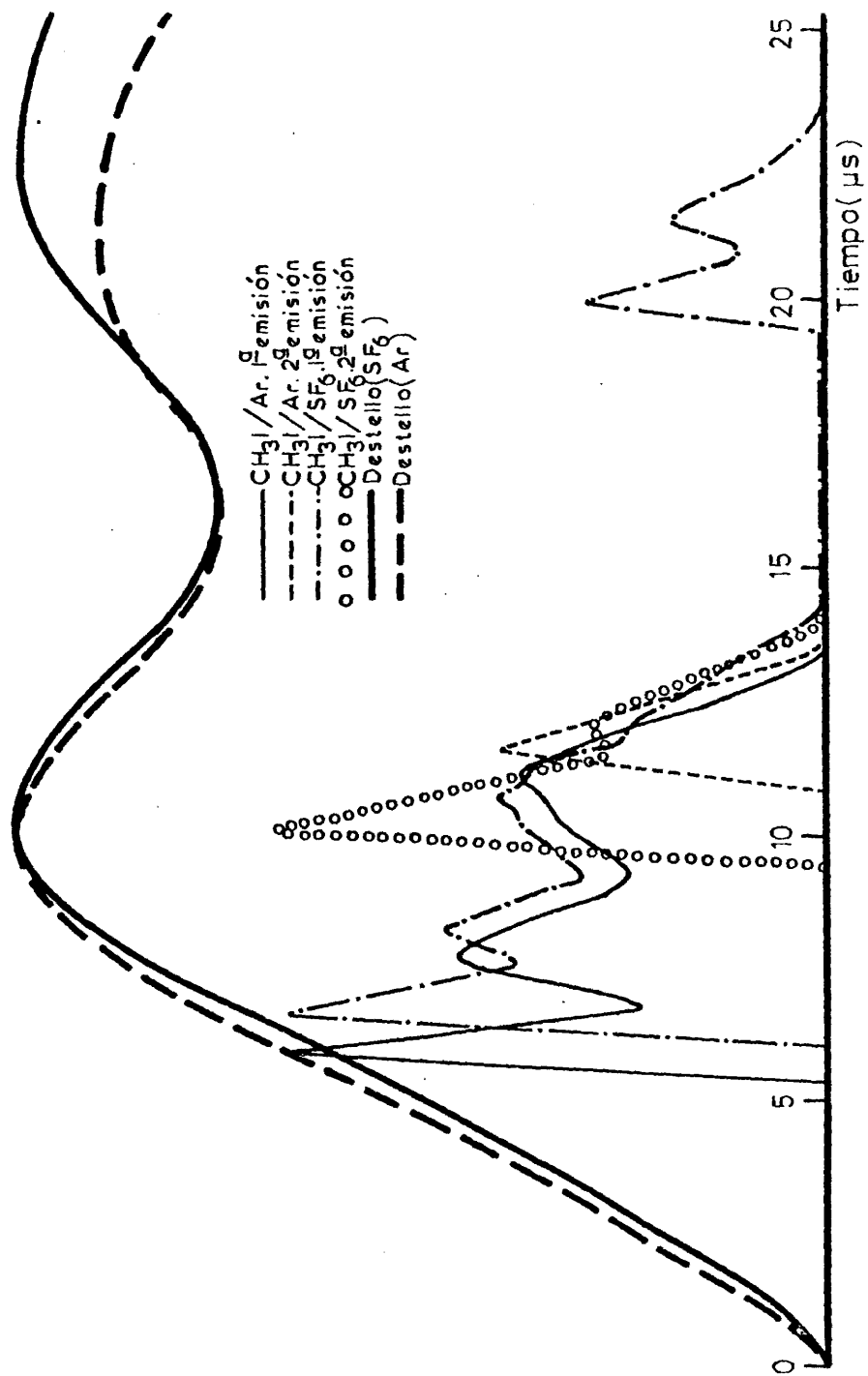


Figura 59.- Emisiones láser consecutivas. Proporciones de las mezclas, 1:9. Energía de descarga, 1197 J. Longitud de onda de la radiación de bombeo  $\lambda > 220$  nm.

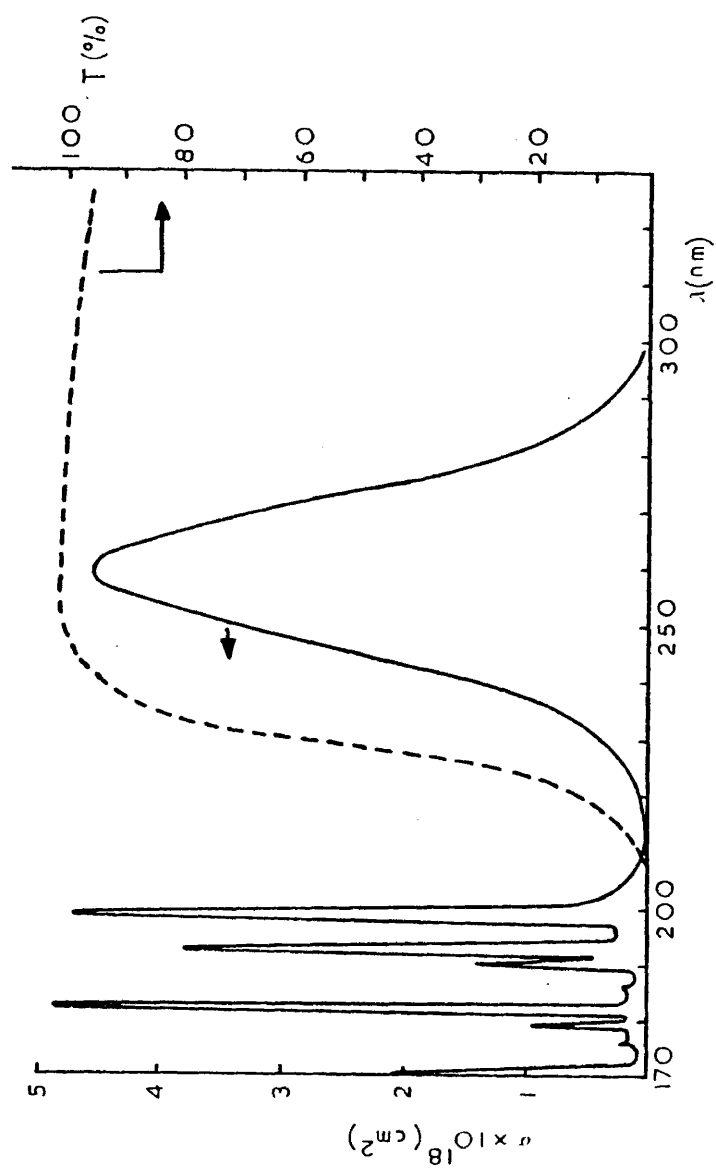


Figura 60.- Espectro de absorción del  $\text{CH}_3\text{I}$  (gas), línea continua, y de la solución filtro, línea de puntos. Las condiciones del espectro de la solución filtro, fueron: solución acuosa de acetamida, 4,0 g/l; longitud de paso de la célula, 1,0 cm.

miento temporal, tanto del destello como de la emisión láser. La escala de tiempos es la misma para el destello y para la emisión láser. En las medidas de tiempo se tomó como cero el tiempo del comienzo del destello. Los resultados presentados son valores medios de, al menos, tres experimentos distintos (cuando la repetitividad del resultado se mantiene dentro del 2% los valores medios son de tres experimentos; en otro caso se toman valores medios de 5 a 8 experimentos distintos). En medidas de intensidad de la emisión láser sólo son comparables entre sí las correspondientes a un mismo sustrato por las mismas razones ya indicadas en el apartado 4.2.2.

#### 4.3.2.2.1. Características de la emisión láser

Cuando se usa  $\text{CH}_3\text{I}$  puro a la energía de descarga de 538 J y se filtra la radiación de bombeo la duración de la señal láser pasa a ser de 7,8  $\mu\text{s}$ , frente a la duración de 4,7  $\mu\text{s}$  que se obtiene cuando no se filtra la radiación de bombeo (tabla XIX). Teniendo en cuenta que el comienzo de la señal se retrasa cuando se usa filtro, se sigue que el uso del filtro produce un retardo notable en la extinción de la emisión láser.

Cuando el  $\text{CH}_3\text{I}$  se diluye en Ar o  $\text{SF}_6$  en la proporción 1:9, las señales que se obtienen, a la energía de descarga de 538 J y filtrando la radiación de bombeo, son muy similares entre sí (figura 57 y tabla XX). El comienzo de la emisión láser se retarda ahora notablemente con respecto al caso en que se emplea  $\text{CH}_3\text{I}$  puro y tiene lugar a un tiempo próximo al que corresponde a la intensidad máxima del destello. La duración de la señal es, asimismo, menor que la correspondiente al  $\text{CH}_3\text{I}$  puro.

TABLA XIX

Características del destello y de la emisión láser, CH<sub>3</sub>I puro. Energía de descarga: 538 J

		LONGITUD DE ONDA DE LA RADIACION DE BOMBEO	
		$\lambda > 165 \text{ nm}$	$\lambda > 220 \text{ nm}^d)$
DESTELLO		1ª EMISION LASER	2ª EMISION LASER
		10,6 0,44	10,6 0,44
EMISION LASER		3,8 8,5 4,7 2,3 4,3	4,9 12,7 7,8 1,0 5,8
		6,0 12,6 6,6 0,8 7,0	
INTENSIDAD DEL DESTELLO EN EL UMBRAL DEL LASER		1,6 6,4	0,4 10,5
		0,12	0,18

a) Tal como se registra en el osciloscopio.

b) Tiempo al que ocurre el pico indicado.

c) El primer pico es también el más intenso.

d) A  $\lambda > 220 \text{ nm}$  se obtiene hasta 23 emisiones láser consecutivas sin necesidad de renovar la mezcla en la cámara de reacción. Reseñamos las dos primeras.

TABLA XX

Características del destello y de la emisión láser. Energía de descarga: 538 J. Longitud de onda de la radiación de bombeo:  $\lambda > 220$  nm.

		GAS DILUYENTE EMPLEADO	
		CH <sub>3</sub> I:Ar 1:9	CH <sub>3</sub> I:SF <sub>6</sub> 1:9
DESTELLO	Tiempo de subida (us)	11,0	9,9
	Intensidad máxima (voltios) <sup>a)</sup>	0,49	0,45
EMISION  LASER	Comienzo de la señal (us)	8,7	9,0
	Final de la señal (us)	14,2	13,8
	Duración total de la emisión (us)	5,5	4,8
	PRIMER Intensidad (voltios) <sup>a)</sup>	1,6	2,7
	PICO <sup>c)</sup> Tiempo (us) <sup>b)</sup>	9,7	9,8
	ULTIMO Intensidad (voltios) <sup>a)</sup> PICO Tiempo (us) <sup>b)</sup>	0,6 12,0	1,3 11,3
INTENSIDAD DEL DESTELLO EN EL UMBRAL DEL LASER (voltios) <sup>a)</sup>		0,43	0,44

a) Tal como se registra en el osciloscopio.

b) Tiempo al que ocurre el pico indicado.

c) El primer pico es también el más intenso.



TABLA XXI

Características del destello y de la emisión laser. CH<sub>3</sub>I:Ar, 1:9. Energía de descarga: 1197J. Longitud de onda de la radiación de bombeo:  $\lambda > 220\text{nm}$ .

	EMISIONES LASER CONSECUTIVAS	
	PRIMERA DESCARGA	SEGUNDA DESCARGA d)
DESTELLO		
	Tiempo de subida ( $\mu\text{s}$ )	10,0
	Intensidad máxima (voltios) a)	0,78
EMISION		
	Comienzo de la señal ( $\mu\text{s}$ )	5,3
	Final de la señal ( $\mu\text{s}$ )	13,5
	Duración total de la emisión ( $\mu\text{s}$ )	8,2
	PRIMER PICO c)	2,8
	Intensidad (voltios) a)	1,7
	TIEMPO b)	5,9
LASER		
	ULTIMO PICO	1,6
	Intensidad (voltios) a)	- e)
	TIEMPO b)	11,2
	Intensidad (voltios) a)	- e)
INTENSIDAD DEL DESTELLO EN EL UMBRAL DEL LASER (voltios) a)	0,45	0,76 f)

- a) Tal como se registra en el osciloscopio.  
b) Tiempo al que ocurre el pico indicado.  
c) El primer pico es también el más intenso.  
d) La segunda emisión láser es también la última.  
e) La segunda emisión láser tiene un único pico.  
f) El umbral ocurre en el descenso tras el máximo del destello.

Características del destello y de la emisión láser. CH<sub>2</sub>I + SF<sub>6</sub>, 1:9. Energía de descarga: 1197J. Longitud de onda de la radiación de bombeo:  $\lambda > 220$  nm.

DESTELLO	EMISIONES LASER CONSECUTIVAS			
	PRIMERA DESCARGA d)		2ª DESCARGA f)	
	1ª SENAL	2ª SENAL	1ª SENAL	2ª SENAL
DESTELLO	Tiempo de subida ( $\mu$ s)	9,7	22,7 <sup>e</sup>	9,7
	Intensidad máxima (voltios) <sup>a)</sup>	0,71	0,71 <sup>e</sup>	0,71
EMISION	Comienzo de la señal ( $\mu$ s)	6,0	19,2	9,0
	Final de la señal ( $\mu$ s)	14,6	22,9	13,9
	Duración total de la emisión ( $\mu$ s)	8,6	3,7	4,9
	PRIMER Intensidad (voltios) <sup>a)</sup>	3,5	1,6	3,8
LASER	PICO <sup>c)</sup> Tiempo ( $\mu$ s) <sup>b)</sup>	6,4	19,7	9,7
	ULTIMO Intensidad (voltios) <sup>a)</sup>	1,8	1,0	1,6
	PICO Tiempo ( $\mu$ s) <sup>b)</sup>	11,4	20,9	11,5
INTENSIDAD DE DESTELLO EN EL				
UMBRAL DEL LASER (voltios) <sup>a)</sup>		0,49	0,64	0,70

- a) Tal como se registra en el osciloscopio  
b) Tiempo al que ocurre el pico indicado.  
c) El primer pico es también el más intenso.  
d) Se obtienen dos señales láser en la misma descarga una correspondiente al primer pico del destello y la otra correspondiente al segundo pico del mismo, ver figura 59.  
e) Tiempo al que ocurre el segundo máximo del destello e intensidad del mismo. Entre los dos máximos del destello hay un mínimo de intensidad de valor 0,55 V, que ocurre a 15,8  $\mu$ s.  
f) La segunda emisión láser es también la última.

Cuando, usando las mezclas  $\text{CH}_3\text{I}/\text{Ar}$  y  $\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$  1:9 y filtrando la radiación de bombeo, se eleva la energía de descarga a 1197 J (tablas XXI-XXII), la duración de la emisión láser experimenta un aumento con respecto al caso en que la energía de descarga era de 538 J; aumento que se debe fundamentalmente a un adelanto en el comienzo de la señal. Además, cuando el gas diluyente es  $\text{SF}_6$  se obtienen dos señales láser en una única descarga (figura 59), una correspondiente al primer máximo del destello y otra correspondiente al segundo máximo del mismo.

#### 4.3.2.2.2. Operación láser repetitiva

El uso del filtro origina un cambio espectacular en el comportamiento del  $\text{CH}_3\text{I}$  puro con respecto a la operación láser repetitiva: usando  $\text{CH}_3\text{I}$  puro, a la energía de descarga de 538 J, se obtienen hasta 23 emisiones láser consecutivas sin necesidad de renovar el sustrato. En la tabla XIX se comparan las características de la primera y segunda de las emisiones láser consecutivas así obtenidas. En la figura 58 se comparan la primera, octava, dieciséisava y vigesimotercera emisiones láser obtenidas sin renovar el sustrato.

Cuando el  $\text{CH}_3\text{I}$  se diluye en Ar o  $\text{SF}_6$  en la proporción 1:9 y se emplea la misma energía de descarga de 538 J, no se obtiene operación láser repetitiva cuando se filtra la radiación de bombeo. Si en estas condiciones se eleva la energía de descarga a 1197 J, se obtiene una segunda emisión láser sin necesidad de renovar el sustrato, tanto cuando el gas diluyente es  $\text{SF}_6$  como cuando es Ar (figura 59 y tablas XXI-XXII).

Usando una mezcla de  $\text{CH}_3\text{I}$ :  $\text{SF}_6$  en la proporción 1:1 a 548 J de energía de descarga y filtrando la radiación de bombeo, la señal que se obtiene es la misma que para el  $\text{CH}_3\text{I}$  puro en las mismas condiciones. Se obtiene asimismo operación repetitiva láser sostenida con las mismas características que cuando se usaba  $\text{CH}_3\text{I}$  puro.

#### 4.4. TRANSMITIVIDAD Y PERDIDAS EN LA CAVIDAD OPTICA. GANANCIA

La determinación precisa de la ganancia de un medio láser tiene una gran importancia por cuanto que la ganancia (que representaremos por la letra G) es uno de los parámetros fundamentales en la regulación y caracterización de la operación láser. El valor de la ganancia regula el almacenamiento de energía en el medio láser así como las características temporales de la emisión, y su conocimiento permite determinar la eficiencia de extracción de un amplificador [56]. El conocimiento de la ganancia permite asimismo determinar el valor de la sección eficaz de emisión estimulada,  $\sigma$ , que es, quizá, el parámetro más importante de un láser. La sección eficaz de emisión estimulada interviene explícitamente en las ecuaciones que describen la operación láser y controla dos de los parámetros más importantes de un amplificador láser, a saber, la amplificación umbral para el comienzo de oscilaciones parásitas y la densidad de energía almacenable en el amplificador [56]. Hemos procedido, en consecuencia, a desarrollar un método que nos permite la determinación de la ganancia del láser en diversas condiciones experimentales.

La ganancia de un medio láser de longitud L es, en la aproximación de pequeña señal (apartado 1.1.4):

$$G = \exp (\sigma \Delta N L) \quad (4.6)$$

donde  $\Delta N$  es la densidad de inversión de población y  $\sigma$  la sección eficaz de emisión estimulada. La aproximación de pequeña señal consiste en considerar despreciables los términos de saturación de modo que la expresión (4.6) solo es válida en las proximidades del umbral de la emisión láser, esto es, para la mínima excitación para la que puede ocurrir oscilación láser.

Determinemos ahora la condición umbral en un oscilador. Consideremos a estos efectos el oscilador esquematizado en la figura 61. Sean  $r_1$  y  $r_2$  las reflectividades de los espejos que cierran la cavidad, y sea  $t$  el factor de transmisión global de todo lo que puede haber en el interior de la cavidad. En ausencia de un medio amplificador (cavidad pasiva) la intensidad  $I_f$  de la radiación después de una oscilación completa en la cavidad se relaciona con la intensidad  $I_i$  al comienzo de la oscilación de la siguiente manera:

$$I_f = r_1 r_2 t^2 I_i \quad (4.7)$$

Si introducimos ahora entre los espejos un medio amplificador de ganancia  $G$ , la expresión (4.7) se convierte en:

$$I_f = r_1 r_2 t^2 I_i G \quad (4.8)$$

La condición umbral consiste en que  $I_f = I_i$  (o sea, la ganancia compensa exactamente las pérdidas) lo que conduce, usando (4.8) a la expresión:

$$r_1 r_2 t^2 G = 1 \quad (4.9)$$

que es válida en el umbral.

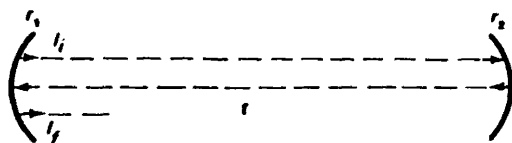


Figura 61

(Notemos que tal como hemos hecho la deducción de la expresión (4.9) la  $G$  que aparece en la misma corresponde a una oscilación completa, o sea, a una doble pasada de la radiación a través del medio amplificador. En consecuencia, a la hora de relacionar la expresión (4.9) con la (4.6) hay que sustituir en esta última  $L$  por  $2L$ ).

La expresión (4.9) es la que usaremos en la determinación de la ganancia según se describe a continuación. Una vez obtenido el valor de  $G$  a partir de (4.9) la expresión (4.6) nos permite determinar el coeficiente de ganancia  $\gamma = \sigma \cdot \Delta N$  y, si conocemos  $\Delta N$ , determinar  $\sigma$ .

#### 4.4.1. Técnicas experimentales

El procedimiento seguido para determinar la ganancia del medio láser consiste en incrementar sistemáticamente las pérdidas de la cavidad (disminuyendo la transmitividad de la misma) hasta que la emisión láser sea apenas detectable, de modo que un ulterior incremento mínimo de las pérdidas sea suficiente para impedir la acción láser. En este momento la ganancia por oscilación del medio es justamente la necesaria para compensar las pérdidas: es el umbral y podemos aplicar la expresión (4.9). La transmitividad  $t$  se varía sistemáticamente introduciendo en la cavidad óptica un cubreobjetos de microscopio situado a diferentes

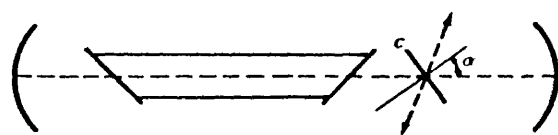


Figura 62

c=cubreobjetos  
de microscopio

ángulos (figura 62). A estos efectos se utilizó un módulo de rotación polar Ardel Kinamatic RT-200 (resolución, 1 s de arco; repetitividad,  $\pm 5$  s de arco; seguridad en la lectura,  $\pm 90$  s de arco), figura 63. El soporte del cubreobjetos consiste en dos láminas de plástico de 6 x 6 cm provistas de una abertura rectangular de 5 x 2 cm entre las que el cubreobjetos queda aprisionado. Estas láminas van atornilladas a una base metálica roscada a un soporte cilíndrico que se sujeta, a su vez, en un pie de base circular (figura 65a-65b). Este pie, finalmente, va atornillado al rotador polar. A fin de permitir movimientos transversales con respecto al tubo láser el rotador polar se acopla a un módulo de translación Ardel Kinamatic T-103 (resolución, 1  $\mu$ m; repetitividad,  $\pm 0,002$  mm), figura 64.

Ya señalamos en el apartado 1.2.4 las razones que hacen conveniente que las ventanas que cierran a ambos lados del tubo láser tengan sus planos situados de modo que el plano formado por el haz incidente a la ventana y la normal a la misma en el punto de incidencia (plano de incidencia) sea el mismo para ambas. Es, por tanto, conveniente que el cubreobjetos que introducimos en la cavidad esté también situado de modo que su plano de incidencia coincida con el de las ventanas a fin de no introducir en la cavidad pérdidas extras incontroladas. En el apartado 3.6.1 se describió un método sencillo para conseguir que los planos

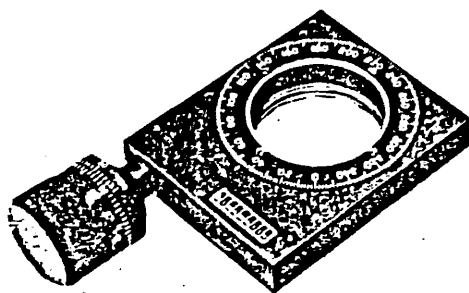


Figura 63.- Módulo de rotación polar RT-200 (Ardel Kinamatic).

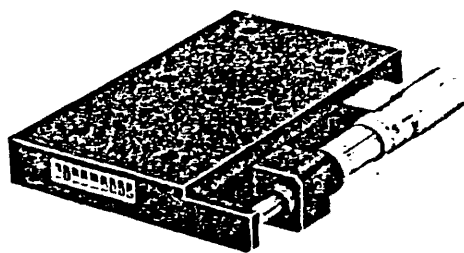


Figura 64.- Módulo de traslación T-103 (Ardel Kinamatic).



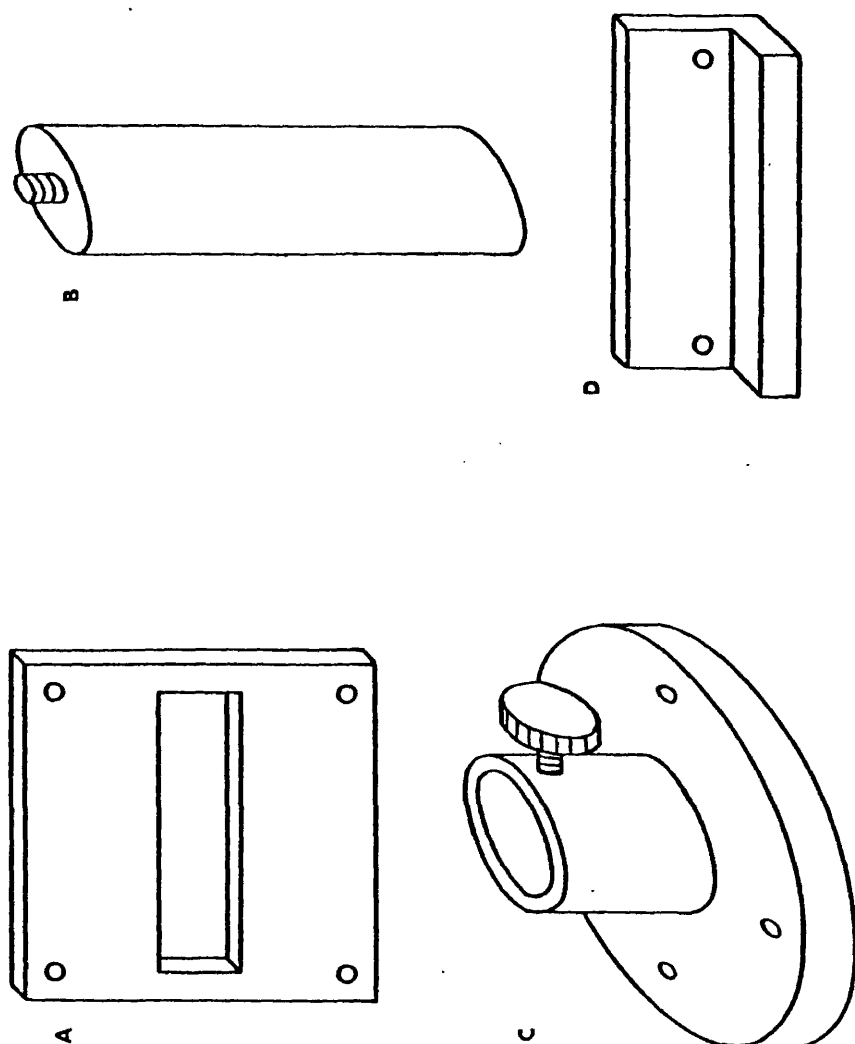


Figura 65-a.- Piezas usadas para la introducción del cubreobjetos extra en la cavidad óptica. Estas piezas se ensamblan tal como se indica en la figura 65-b.

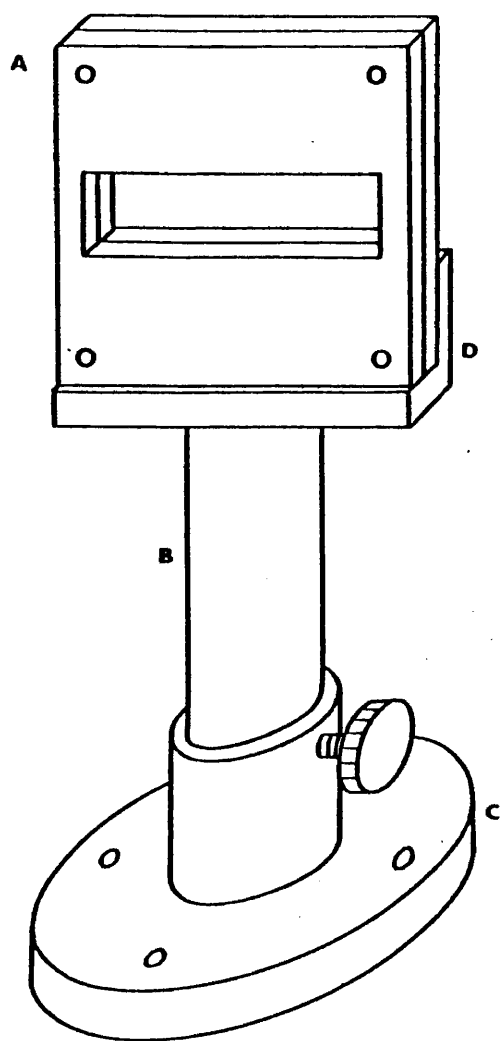


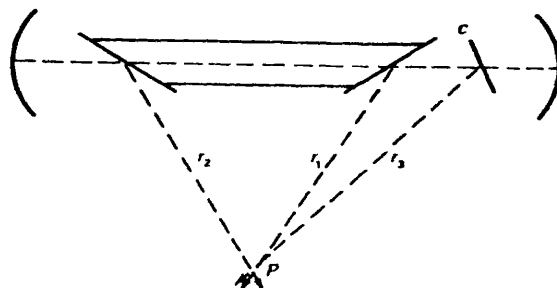
Figura 65-b.- Ensamblaje de las piezas mostradas en la figura 65-a.  
El pie C se atornilla al módulo de rotación mostrado  
en la figura 63.

de incidencia correspondientes a ambas ventanas coincidan. Este mismo método se puede utilizar ahora para situar el cubreobjetos en la posición adecuada. A estos efectos utilizamos, al igual que entonces, un láser comercial de He-Ne como herramienta auxiliar. Se situa, en primer lugar, el cubreobjetos C en la cavidad a un ángulo tal que el rayo reflejado por el mismo,  $r_3$ , pase por la posición P (figura 66). Se colocan a continuación las ventanas que cierran a ambos lados el tubo láser y se rota suavemente el terminal al que va unida cada una de las mismas hasta conseguir que los rayos reflejados  $r_1$  y  $r_2$  se corten en el punto P entre sí y con  $r_3$ .

#### 4.4.1.1. Determinación de la transmitividad

Las pérdidas que introduce el cubreobjetos C (figura 62) son la luz que refleja, tanto a la ida como a la vuelta del haz, fuera de la cavidad. A fin de estimar estas pérdidas introducidas por el cubreobjetos hay que tener en cuenta que el mismo es una lámina de caras plano-paralelas. Cuando un haz luminoso incide en una lámina de este tipo se producen múltiples reflexiones internas entre las dos caras de la lámina con el resultado de la aparición de una serie de haces de amplitud decreciente emergiendo de cada lado de la lámina (figura 67). Se producen entonces efectos de interferencia entre los mismos de modo que para ciertos ángulos de incidencia se originan máximos de transmisión. La in-

Figura 66



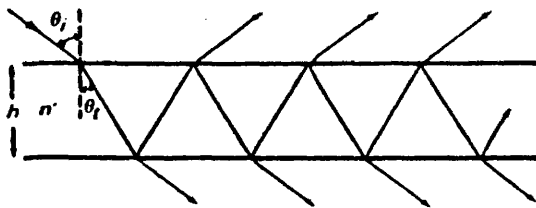


Figura 67

tensidad de la luz transmitida por una lámina de este tipo viene dada por la expresión [7-b] :

$$\frac{I_t}{I_i} = \frac{1}{1 + F \sin^2 \frac{\delta}{2}} \quad (4.10)$$

donde:

$$\delta = \frac{4\pi}{\lambda_0} n' h \cos \theta_t \quad ; \quad F = \frac{4R}{(1-R)^2} \quad (4.11)$$

En estas expresiones  $I_t$  es la intensidad transmitida,  $I_i$  la intensidad incidente,  $R$  la reflectividad de las superficies de la lámina,  $\lambda_0$  la longitud de onda en el vacío de la radiación incidente,  $n'$  el índice de refracción de la lámina,  $h$  el espesor de la lámina y  $\theta_t$  el ángulo de transmisión de la luz incidente. Como la radiación oscilante en la cavidad óptica está polarizada paralelamente al plano de incidencia (apartado 1.2.4) usamos para  $R$  el valor [7-c] :

$$R_{||} = \frac{t_g^2 (\theta_i - \theta_t)}{t_g^2 (\theta_i + \theta_t)} \quad (4.12)$$

Los ángulos de incidencia y de refracción se relacionan entre sí, a su vez, por la conocida ley de Snell:

$$n \sin \theta_i = n' \sin \theta_t \quad (4.13)$$

donde  $n$  es el índice de refracción del medio exterior a la lámina (aire en nuestro caso). En la figura 68 se representa la expresión (4.10) en función de  $\theta_i$  para  $\lambda_0 = 1,315 \mu\text{m}$ . Se aprecian claramente los máximos y los mínimos de interferencia.

Para obtener lo que realmente transmite el cubreobjetos es necesario restar el valor teórico dado por (4.10) lo que absorbe la lámina al ángulo de incidencia dado. La absorción de la lámina a incidencia normal y para la longitud de onda de  $1,315 \mu\text{m}$  se determinó por medio de un espectrofotómetro Perkin-Elmer 350. El espectrofotómetro nos proporciona la intensidad realmente transmitida por la lámina a incidencia normal. Como por medio de la expresión (4.10) concedemos lo que teóricamente debería transmitir la lámina, la diferencia entre ambas cantidades representa la absorción del cubreobjetos a incidencia normal para la longitud de onda de  $1,315 \mu\text{m}$ . Se puede suponer sin cometer un error excesivo que la absorción de la lámina a otros ángulos de incidencia es la misma que a incidencia normal (de hecho, cuando se sitúa el cubreobjetos en la cavidad de modo que el haz láser incida normalmente al mismo, la señal láser que se obtiene, a 538J de energía de descarga y usando como sustrato  $\text{CH}_3\text{I}$  puro, es exactamente la misma que cuando el cubreobjetos se sitúa de modo que el ángulo de incidencia es de  $64^\circ$ ; puesto que la intensidad teórica transmitida es muy similar en ambos casos -99,92% a incidencia normal y 99,80% para un ángulo de incidencia de  $64^\circ$ -las pérdidas introducidas por la absorción deben ser también muy similares), con lo que dispondríamos del dato que necesitamos para poder estimar la transmitti-

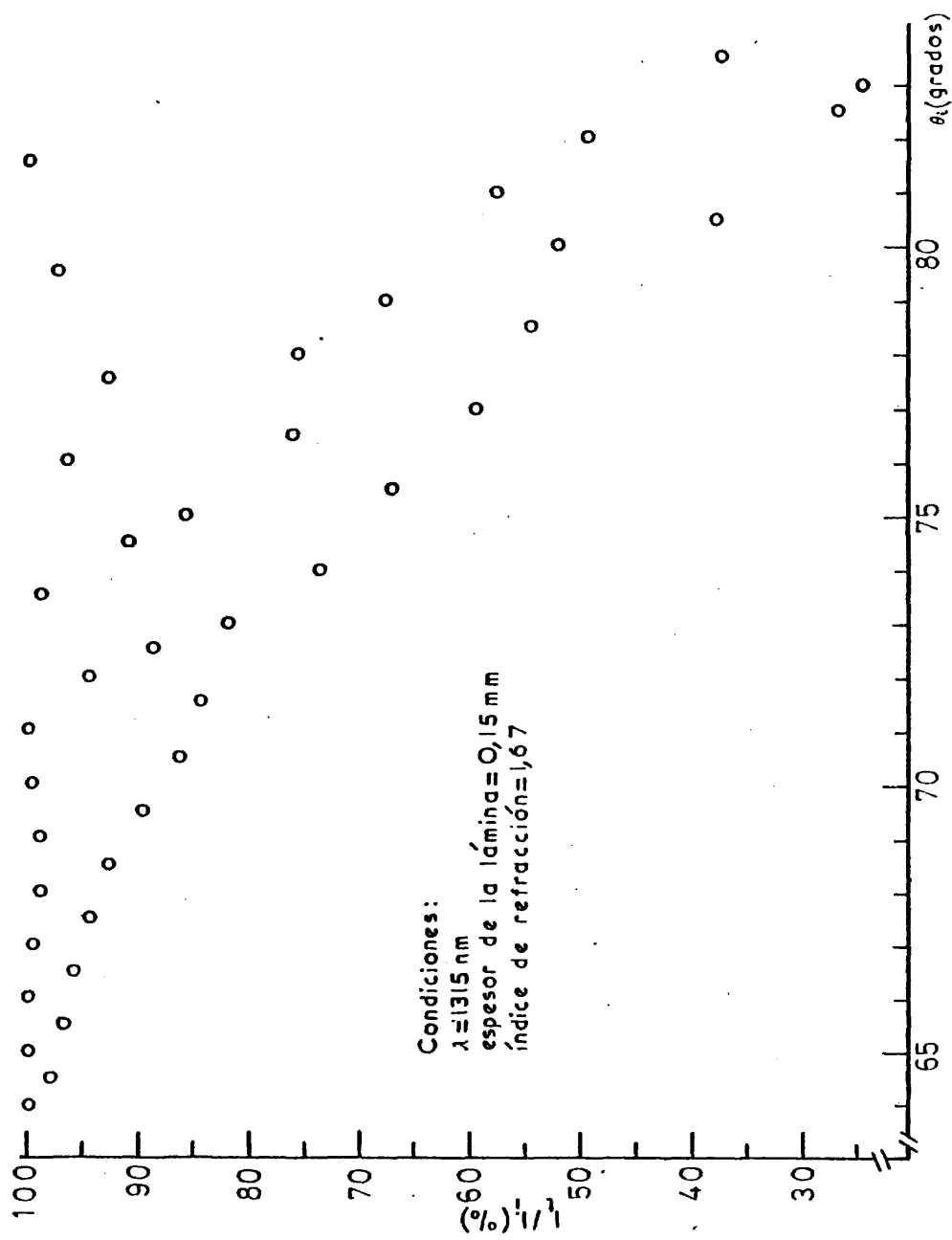


Figura 68.- Transmisividad teórica del cubreobjetos de microscopio en función del ángulo de incidencia.

vidad real del cubreobjetos a los diferentes ángulos de incidencia.

El procedimiento indicado puede no ser totalmente satisfactorio porque supone implícitamente que el cubreobjetos es una lámina plano-paralela perfecta. Si no lo es, o si tiene otras imperfecciones, puede ocurrir que la expresión (4.10) no se cumpla rigurosamente y que la curva que proporciona la variación de  $I_t/I_i$  en función de  $\theta_i$  no presente las oscilaciones indicadas en la figura 68. A fin de comprobar si ocurre esto procedimos a determinar experimentalmente el valor de  $I_t/I_i$  en función del ángulo de incidencia, con intervalos de medio en medio grado, para la longitud de onda  $\lambda_0 = 0,6328 \mu\text{m}$  correspondiente a nuestro láser auxiliar de He-Ne. El montaje experimental utilizado es el indicado en la Figura 69. La radiación continua emitida por el láser de He-Ne es convertida en radiación pulsada, tras haber atravesado el cubreobjetos, por medio de un cortador. Los pulsos así obtenidos llegan a un detector de infrarrojo de InSb (de características reseñadas en el apartado 3.3) cuya salida, amplificada en un factor 1000 (figura 23), es registrada en un osciloscopio. Se ajusta la posición del láser de He-Ne de modo que el cubreobjetos quede perfectamente normal con respecto al haz luminoso emitido por el láser. Esto ocurre cuando el haz reflejado por el cubreobjetos hacia el láser vuelve a alcanzar el cubreobjetos, tras reflejarse a su vez en el espejo de la cavidad interna del láser, en el mismo punto inicial (o sea, cuando la mancha luminosa producida en el cubreobjetos por el haz reflejado en el espejo de la cavidad interna del láser de He-Ne coincide con la producida por el haz inicial). Una vez que se ha logrado esto se va rotando el láser de He-Ne en torno a su eje hasta conseguir que el haz luminoso (que está linealmente polarizado) que de polarizado paralelamente al plano de incidencia al cubreobjetos, pues

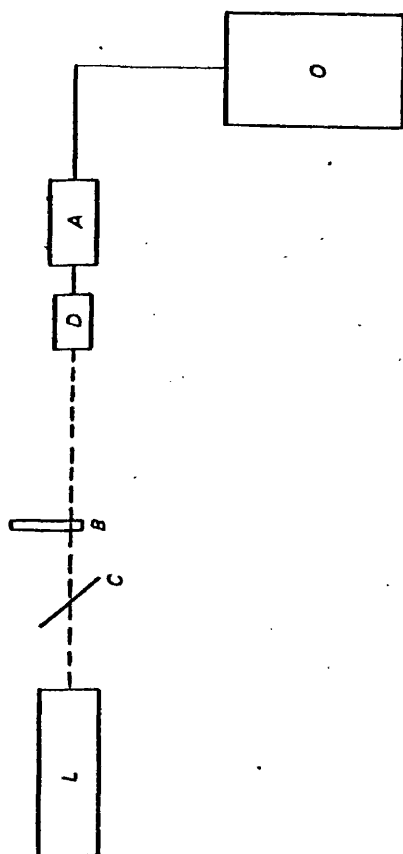


Figura 69.- Montaje experimental utilizado para medir transmittividades: L, láser de He-Ne; C, cubreobjetos de microscopio; B, cortador para convertir la señal emitida por L en pulsos; D, detector IP; A, amplificador; O, osciloscopio.



to que este es el tipo de radiación que tendremos en la cavidad láser. La radiación emitida por el láser de He-Ne está polarizada en el plano requerido cuando, tras situar el cubreobjetos al ángulo de Brewster, la señal registrada por el osciloscopio alcanza un valor máximo de intensidad, puesto que cuando el ángulo de incidencia es el de Brewster se verifica que  $R_{\parallel} = 0$  (toda la radiación polarizada paralelamente al plano de incidencia es transmitida).

Una vez realizados los ajustes indicados se puede proceder a efectuar las medidas. Situando el cubreobjetos a los diferentes ángulos se registraron en el osciloscopio los pulsos correspondientes. En cada caso se registraron también los pulsos con el cubreobjetos situado fuera del camino de la radiación. La intensidad de estos últimos pulsos se toma como referencia y se le asigna el valor 100. Es entonces inmediato de terminar, a partir de la altura de los pulsos registrados para los diver sos ángulos de incidencia, el tanto por ciento de la intensidad transmitida en cada caso. Los resultados así obtenidos se han representado en la figura 70. En la figura 71 se han representado los resultados teóricos que proporciona la expresión (4.10) para el caso en que la longitud de onda de la radiación incidente en la lámina es  $\lambda_0 = 0,6328 \mu\text{m}$ . Se com prueba que en los valores experimentales han desaparecido las oscilaciones de intensidad que se obtienen a partir de la expresión teórica y que el valor de  $I_t/I_i$  decrece monótonamente al aumentar el ángulo de inciden cia. Aunque aparentemente los puntos experimentales van siguiendo los mínimos teóricos hay que tener en cuenta que en realidad están situados por encima de ellos, puesto que en los puntos teóricos representados no es tá incluido el efecto de la absorción (que es del orden del 6%). Esto es

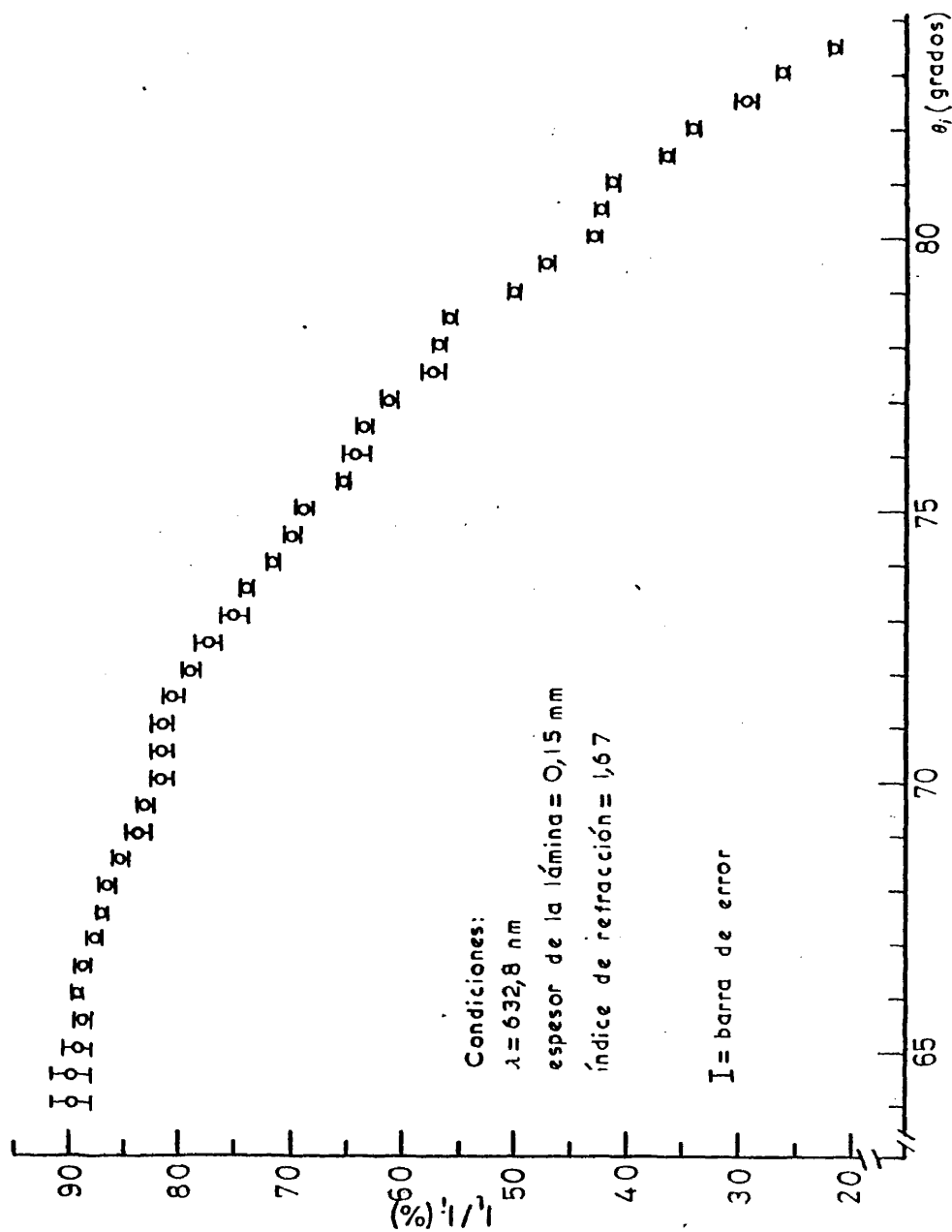


Figura 70.- Transmitividad experimental del cobreobjetos de microscopio en función del ángulo de incidencia.

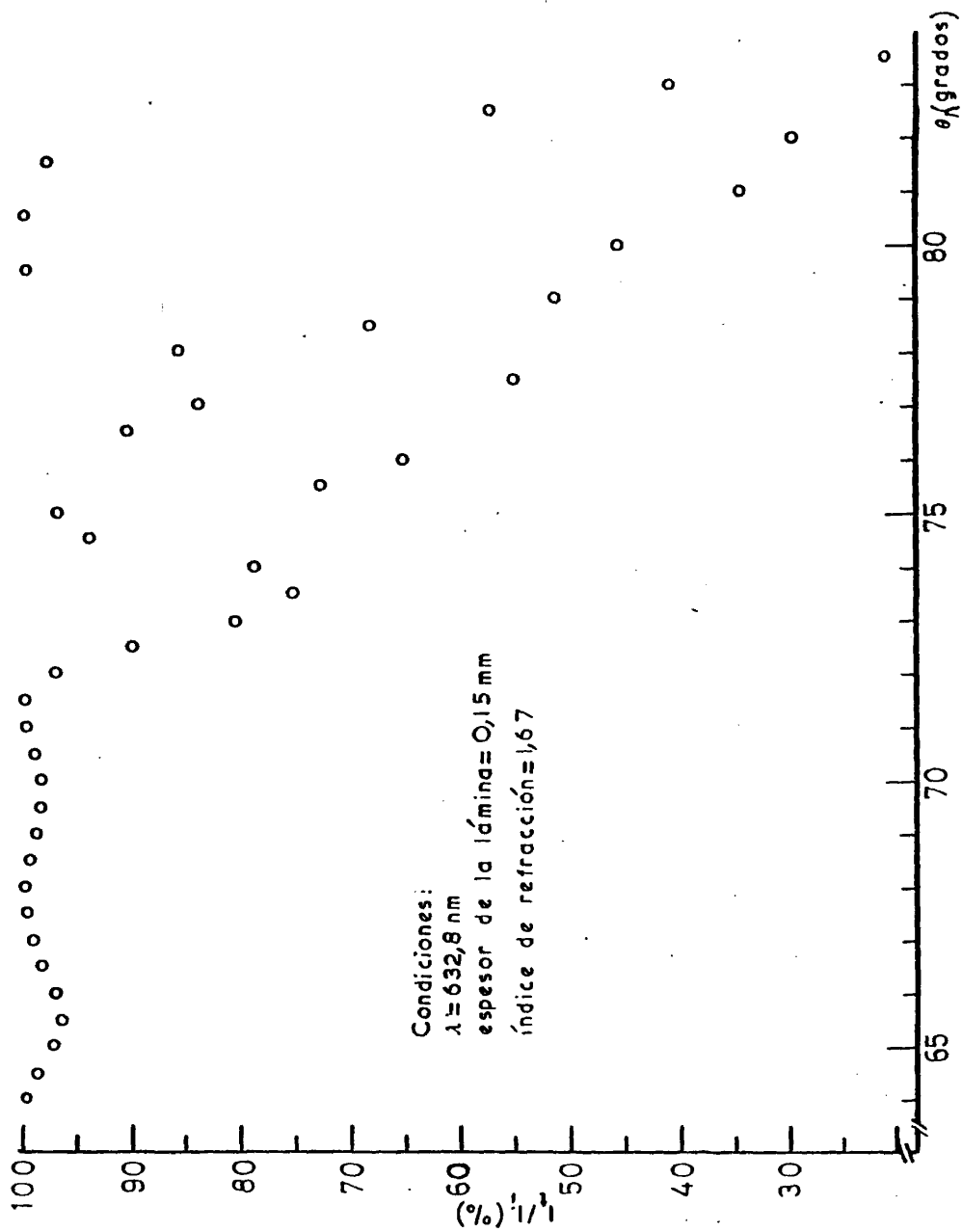


Figura 71.- Transmisividad teórica del cubreobjetos de microscopio en función del ángulo de incidencia.

razonable puesto que si las imperfecciones del cubreobjetos eliminan los máximos teóricos también deben eliminar los mínimos, de modo que se obtenga una variación suave de  $I_t/I_i$  con el ángulo de incidencia con valores situados entre los máximos y los mínimos teóricos.

Los valores experimentales obtenidos para  $I_t/I_i$  usando la radiación emitida por el láser de He-Ne a  $0,6328 \mu\text{m}$  también se pueden utilizar para la longitud de onda del láser de iodo,  $\lambda_o = 1,315 \mu\text{m}$ . En efecto, comparando los resultados teóricos para las longitudes de onda de  $0,6328 \mu\text{m}$  y  $1,315 \mu\text{m}$  (figura 71 y 68) se comprueba que los máximos y los mínimos coinciden en valor, si bien están desplazados los unos con respecto a los otros, de modo que si se traza una curva que pase por todos los mínimos la curva que se obtendría para los resultados a  $\lambda_o = 0,6328 \mu\text{m}$  coincide con la correspondiente a  $\lambda_o = 1,315 \mu\text{m}$ , obteniéndose un resultado similar para los máximos. En estas condiciones los valores experimentales obtenidos para  $\lambda_o = 0,6328 \mu\text{m}$ , que representan un caso intermedio entre los máximos y los mínimos teóricos originado por las imperfecciones de la lámina, deben ser igualmente válidos para  $\lambda_o = 1,315 \mu\text{m}$ . Confirmando el anterior razonamiento, medidas experimentales realizadas con un espectrofotómetro Perkin-Elmer 200 para incidencia normal y próxima a la normal muestran que la intensidad transmitida por el cubreobjetos es la misma cuando  $\lambda_o = 0,6328 \mu\text{m}$  que cuando  $\lambda_o = 1,315 \mu\text{m}$ .

Los valores de la transmitividad del cubreobjetos obtenidos por el procedimiento descrito fueron confirmados determinando dicha transmitividad por medio de un procedimiento completamente distinto. Este procedimiento, que describiremos a continuación, es indirecto y sujeto a

mayores posibilidades de error, radicando su valor en su caracter configu  
ratorio de los valores proporcionados por el precedente. Consiste en lo  
siguiente. Introducimos el cubreobjetos en la cavidad óptica y situándo-  
lo a diferentes y apropiados ángulos vamos incrementando suavemente las  
pérdidas de la cavidad hasta que deja de obtenerse emisión láser. El cu-  
breobjetos formará entonces un ángulo determinado con el eje óptico del  
resonador al que corresponderá un determinado valor de  $I_t/I_i$  de acuerdo  
con los valores experimentales reseñados en figura 70. A continuación re  
tiramos el cubreobjetos de la cavidad óptica y situamos en la misma una  
célula de espectrofotometría de cuarzo (Spectrosil) de 1 cm de paso lle-  
na con acetona, condiciones en las que transmite un 85% de la luz inci-  
dente en la misma a la longitud de onda de 1,315  $\mu\text{m}$  (tal como se deter-  
minó con un espectrofotómetro). La transmitividad de la célula llena con  
acetona se va disminuyendo paulatinamente vertiendo en la misma agua des  
tilada gota a gota (la célula llena únicamente con agua destilada trans-  
mite sólo el 23% de la luz incidente a  $\lambda_0 = 1,315 \mu\text{m}$ ) hasta el mo-  
mento en que deje de obtenerse emisión láser. Llevando entonces la célu-  
la a un espectrofotómetro se determina la transmitividad de la misma la  
cual deberá, evidentemente, coincidir con la transmitividad del cubreob-  
jetos puesto que, con el resto de las condiciones idénticas, cesa de ob-  
tenerse emisión láser cuando las pérdidas extras que introducimos en la  
cavidad alcanzan un determinado valor, siempre el mismo. Pues bien, uti-  
lizando el dispositivo lámpara de destello - tubo láser descrito en el  
apartado 4.2.1, con  $\text{CH}_3\text{I}$  puro como sustrato y a la energía de descarga  
de 538 J, se dejó de obtener emisión láser cuando la célula con agua des  
tilada disuelta en acetona transmite el 80% de la luz que incide en ella.

Cuando se utilizó el cubreobjetos de microscopio dejó de obtenerse emisión láser cuando el ángulo de incidencia de la radiación sobre el mismo fue de  $72^\circ$  ángulo para el que la transmisión del cubreobjetos es del 79%.

La transmitividad de las ventanas que cierran a ambos lados el tubo láser, una al ángulo de Brewster y la otra a un ángulo de  $10^\circ$  menor, se determinó por el mismo procedimiento ya descrito, tanto cuando dichas ventanas son cubreobjetos del microscopio como en el caso en que se usaron ventanas de zafiro.

#### 4.4.1.2. Determinación de la ganancia

El procedimiento descrito en el apartado anterior nos permite conocer la transmitividad del cubreobjetos justo cuando deja de obtenerse emisión láser. Sea  $t_3$  el valor de dicha transmitividad. Los otros elementos que contribuyen a la transmitividad de la cavidad óptica son las dos ventanas que cierran a ambos lados el tubo láser, una al ángulo de Brewster y la otra a un ángulo  $10^\circ$  menor (despreciamos los efectos que puedan ejercer sobre  $t$  las posibles inhomogeneidades ópticas del medio amplificador). Sean  $t_1$  y  $t_2$  sus respectivas transmitividades. En estas condiciones, se tiene  $t = t_1 t_2 t_3$ . Los valores  $r_1$  y  $r_2$  de las reflectividades a  $1,315 \mu\text{m}$  de los espejos que cierran la cavidad óptica las proporciona el fabricante y son, como indicamos en el apartado 3.1,  $r_1 = r_2 = 0,98 \pm 0,01$ . Aplicando la expresión (4.9) obtenemos inmediatamente el valor de la ganancia en el umbral en el caso considerado. Este valor de  $G$  así obtenido nos permite determinar, a partir de la expresión (4.6), el coeficiente de ganancia  $\gamma = \sigma \Delta N$ . Al llegar aquí conviene indicar que el va-

lor de  $\Delta N$  correspondiente a la ganancia que hemos determinado por el procedimiento descrito es el valor máximo de la inversión de población que puede producir un bombeo dado (o sea, el máximo de inversión de población que produce el bombeo en ausencia de oscilación láser), que llamaremos  $\Delta N_0$ . En efecto, al ir aumentando las pérdidas en la cavidad lo que hacemos es incrementar el valor de la inversión de población necesaria para que comience la emisión láser, o sea, aumentamos el valor de  $\Delta N_t$ , inversión de población umbral para la emisión láser. Llega, pues, un momento en que las pérdidas artificiales que introducimos en la cavidad son tales que el valor de  $\Delta N_t$  necesario para compensar estas pérdidas y que pueda iniciarse la oscilación láser coincide con la máxima inversión de población que es capaz de producir el bombeo, o sea,  $\Delta N_t = \Delta N_0$ . Si incrementamos algo más las pérdidas, el valor de  $\Delta N_t$  se hace mayor que  $\Delta N_0$ , lo que implica que deja de obtenerse emisión láser. Para obtener oscilación láser en estas condiciones sería necesario incrementar  $\Delta N_0$ , lo que se puede conseguir, en principio, aumentando la energía de descarga, o sea, haciendo mayor el bombeo.

#### 4.4.2. Resultados

##### 4.4.2.1. Medidas de transmitividad y pérdidas en la cavidad óptica

El procedimiento descrito en el apartado 4.4.1.1 proporciona los siguientes valores para la transmitividad a  $1,315 \mu\text{m}$  de las ventanas que cierran a ambos lados la célula láser:

TABLA XXIII

		Angulo de la ventana	
		Angulo de Brewster	Angulo 10° menor que el de Brewster
Tipo de ventana	Zafiro	0,98±0,01	0,92 ± 0,01
	Cubreobjetos de microscopio	0,93±0,01	0,92 ± 0,01

A partir de los valores reseñados en la tabla XXIII para la transmitividad de las ventanas que cierran a ambos lados el tubo láser y de los valores de la reflectividad de los espejos que cierran la cavidad óptica (apartado 3.1) podemos estimar las pérdidas inherentes a la cavidad para la longitud de onda de 1,315  $\mu\text{m}$  y para una oscilación completa del pulso láser. Aplicando la expresión (4.7) con  $t^2 = t_1^2 t_2^2$ , siendo  $t_1$  y  $t_2$  las transmitividades de las ventanas se tiene, para el caso en que se usan ventanas de zafiro:

$$\frac{I_f}{I_i} = (0,98)^2 (0,98)^2 (0,92)^2 = 0,78 \quad (4.14)$$

Cuando las ventanas son cubreobjetos de microscopio:

$$\frac{I_f}{I_i} = (0,98)^2 (0,93)^2 (0,92)^2 = 0,70 \quad (4.15)$$

La fracción de radiación que se pierde en la cavidad en una oscilación completa por causas intrínsecas a los elementos que la componen es entonces,



$$\begin{array}{ll} \text{ventanas de zafiro} & \dots\dots\dots 1 - 0,78 = 0,22 \\ \text{cubreobjetos de microscopio} & \dots\dots\dots 1 - 0,70 = 0,30 \end{array} \quad (4.16)$$

Llamando P al tanto por uno de pérdidas, y poniendo  $r = r_1 = r_2$

$$P = 1 - r^2 t_1^2 t_2^2 \quad (4.17)$$

de donde,

$$\frac{\Delta P}{P} = 2 \left[ \frac{\Delta r}{r} + \frac{\Delta t_1}{t_1} + \frac{\Delta t_2}{t_2} \right] \quad (4.18)$$

que nos permite estimar el error en la determinación de las pérdidas de la cavidad. Usando los resultados de la tabla XXIII así como los que proporciona (4.16) en la expresión (4.18) se tiene finalmente:

$$\begin{array}{ll} \text{ventanas de zafiro} & \dots\dots\dots P = 0,22 \pm 0,01 \\ \text{cubreobjetos} & \dots\dots\dots P = 0,30 \pm 0,02 \end{array} \quad (4.19)$$

#### 4.4.2.2. Medidas de la ganancia

Se efectuaron medidas de ganancia utilizando como dispositivo experimental el descrito en el apartado 4.3.2.1. Se obtuvieron resultados utilizando como sustrato  $\text{CH}_3\text{I}$  puro y  $\text{CH}_3\text{I}$  diluido en Ar o  $\text{SF}_6$  en la proporción 1:9 y tanto filtrando como sin filtrar la radiación de bombeo. La energía de descarga utilizada fue de 538 y de 1197 J. Los resultados obtenidos se suman en las tablas XXIV y XXV. La ganancia correspondiente a la cavidad pasiva (o sea, la ganancia necesaria para compensar exactamente las pérdidas de la cavidad pasiva determinadas en el apartado anterior) es  $G = 1,4 \pm 0,1$ .

Un primer hecho que resalta a la vista de los resultados obte-

TABLA XXIV  
Medidas de ganancia. Energía de descarga: 538J

	LONGITUD DE ONDA DE LA RADIACION DE BOMBEO	
	$\lambda > 165 \text{ nm}$	$\lambda > 220 \text{ nm}$
SUSTRATO	CH <sub>3</sub> I puro	2,0 ± 0,1
	CH <sub>3</sub> I:SF <sub>6</sub> 1:9	1,8 ± 0,1
	CH <sub>3</sub> I:Ar 1:9	2,1 ± 0,2
		1,7 ± 0,1
		2,0 ± 0,1
		1,7 ± 0,1

TABLA XXV  
Medidas de ganancia. Energía de descarga: 1197J

	LONGITUD DE ONDA DE LA RADIACION DE BOMBEO	
	$\lambda > 165 \text{ nm}$	$\lambda > 220 \text{ nm}$
SUSTRATO	CH <sub>3</sub> I:SF <sub>6</sub> 1:9	2,0 ± 0,1
		2,2 ± 0,2

nidos a 538 J de energía de descarga es que la adición de gases inertes carece prácticamente de efecto sobre el valor de la ganancia tanto cuando se filtra como cuando no se filtra la radiación de bombeo. Un segundo hecho que se desprende inmediatamente de la tabla XXIV es que la presencia de radiación con longitud de onda corta incrementa la ganancia del medio. Conviene señalar, por último, la inversión que se aprecia en la relación entre los valores de la ganancia correspondientes a filtrar o no filtrar la radiación de bombeo al pasar de bajas a altas energías de descarga: a 538 J de energía de descarga la ganancia es menor cuando se filtra la radiación de bombeo que cuando no se filtra, ocurriendo lo contrario al aumentar la energía de descarga a 1197J. Mientras que la ganancia no aumenta con la energía de descarga cuando la longitud de onda de la radiación de bombeo es  $\lambda > 165$  nm, sí que lo hace cuando  $\lambda > 220$  nm.

En el apartado 5.2.2.3 usaremos estos valores de la ganancia junto con la expresión (4.6) para, una vez conocido el valor de  $\Delta N$ , determinar la sección eficaz de emisión estimulada.

## V. OPERACION LASER UTILIZANDO $\text{CH}_3\text{I}$ COMO MEDIO ACTIVO: DISCUSION

Vamos a proceder en primer lugar a una discusión cualitativa de los resultados presentados en el capítulo precedente. Los argumentos cualitativos presentados en esta primera sección serán utilizados cuantitativamente en la sección siguiente para desarrollar un modelo cinético del láser de iodo con  $\text{CH}_3\text{I}$  como medio activo. Las predicciones del modelo concuerdan satisfactoriamente con los resultados experimentales.

### 5.1. INTERPRETACION CUALITATIVA DE LOS RESULTADOS

#### 5.1.1. Efecto de la longitud de onda de irradiación sobre la fotólisis

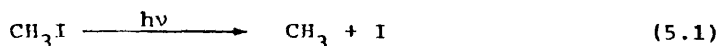
##### 5.1.1.1. Dependencia de la fotólisis con la longitud de onda de irradiación

Parece generalmente aceptado que tanto la marcada auto-extinción como la aparente carencia de operación láser repetitiva [103] , [131] del láser de iodo cuando se usa  $\text{CH}_3\text{I}$  como medio activo son debidas a la pirólisis (descomposición térmica) del sustrato. No obstante, el término pirólisis sugiere un equilibrio de temperatura en el medio, lo que puede ser realista en el caso de pulsos largos obtenidos cuando el medio activo es un perfluoro alquil yoduro [52] pero no cuando es un yoduro de alquilo, en cuyo caso los pulsos terminan, cuanto más, en unos pocos microsegundos. La hipótesis de la pirólisis parece ser, pues, demasiado cruda, siendo necesaria una aproximación al problema en que se tenga adecuadamente en cuenta la influencia sobre los subsiguientes eventos cinéticos de la cantidad y tipo (vibracional, traslacional,...) de la ener-

gía depositada inicialmente sobre los fotofragmentos, lo que requiere el considerar más detalladamente el mecanismo de la operación láser cuando se emplea  $\text{CH}_3\text{I}$  como sustrato.

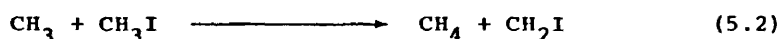
La primera observación importante es la de la existencia de bandas intensas de absorción en el espectro electrónico del  $\text{CH}_3\text{I}$  en la vecindad y por debajo de 200 nm (apartado 2.2.1). Nos podemos preguntar entonces si estas bandas juegan un papel en la operación láser. Para contestar a esta pregunta tenemos que analizar en primer lugar si la fotólisis del  $\text{CH}_3\text{I}$  depende de la longitud de onda de irradiación.

Es sorprendente la escasa atención que, comparativamente, ha recibido el estudio de los productos de fotodescomposición en el láser de iodo. En particular, no se ha publicado ningún estudio detallado acerca de los productos del láser de iodo cuando se usa  $\text{CH}_3\text{I}$  como sustrato a pesar de haber transcurrido más de una década desde su descubrimiento. No obstante, hace muchos años que West y Schlessinger [228] describieron la fotólisis estacionaria del  $\text{CH}_3\text{I}$  con considerable detalle. El proceso primario de la fotólisis a  $\lambda = 253,7$  nm es la disociación en radicales  $\text{CH}_3$  y en iodo atómico:

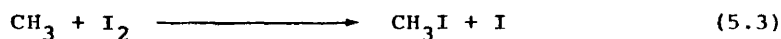


Las reacciones subsiguientes de estos radicales deberían ser las responsables de los complejos procesos observados.

Años más tarde [229], se atribuyó la reacción de abstracción de hidrógeno:



a los radicales  $\text{CH}_3$  "calientes" y se suministraron pruebas en favor de la reacción:



que fueron posteriormente confirmados [230] .

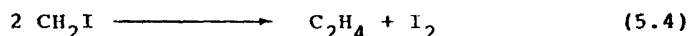
En 1954, Harris y Willard [114] encontraron que la fotólisis a 184,9 nm producía radicales metilo con energía suficiente como para originar la reacción (5.2) y sugirieron que dichos radicales metilo estaban vibracionalmente excitados. El trabajo posterior de Souffie et al [231] y Doepker y Ausloos [232] confirmó en términos generales el mecanismo previamente desarrollado.

La aparición de técnicas más elaboradas permitió una aproximación más cuantitativa al problema, y así Riley y Wilson [115] mostraron inequívocamente, usando espectroscopía de fotofragmentación, que el radical metilo "caliente" formado a  $\lambda=266,2$  nm está excitado en forma translacional más que internamente.

Parece, pues, clara una dependencia de la fotólisis del  $\text{CH}_3\text{I}$  con la longitud de onda de irradiación, de modo que la fotólisis a longitudes de onda correspondientes a la banda de absorción del  $\text{CH}_3\text{I}$  centrada en 254 nm produce radicales metilo con energía predominantemente en forma traslacional, mientras que la fotólisis a longitudes de onda por debajo de 200 nm origina un mayor rendimiento de formación de radicales metilo vibracionalmente excitados. Se puede, por tanto, considerar que

las longitudes de onda por debajo de 200 nm son las principales responsables de la aparición en el medio de radicales metilo excitados vibracionalmente.

En estas condiciones, el uso de un filtro limitando las longitudes de onda que alcanzan el medio a aquellas por encima de 220 nm produce efectos destacables. El primero, y más notable, es el de la aparición de operación láser repetida sostenida (apartado 4.3.2.2.2): a 538 J de energía de descarga se obtienen hasta 23 emisiones láser sucesivas sin necesidad de renovar el sustrato. Cuando no se filtra la radiación de bombeo, permitiendo que el sustrato sea también alcanzado por radiación de longitud de onda por debajo de 220 nm, no se produce operación láser repetitiva, siendo necesario renovar el sustrato después de cada destello. Interpretamos que el filtro evita la formación de radicales metilo vibracionalmente excitados y, por consiguiente, la descomposición vía abstracción de hidrógeno (reacción (5.2)). También se evita la reacción subsiguiente del  $\text{CH}_2\text{I}$ :



Resultados experimentales correspondientes al análisis de los productos de fotólisis del láser [233] muestran que el filtro elimina prácticamente la formación de  $\text{CH}_4$  y  $\text{C}_2\text{H}_4$ : un solo destello sin filtro produce diez veces la cantidad que se forma de estos productos después de 24 destellos con filtro.

Los efectos observados podrían ser debidos simplemente a la reducción de la luz de entrada sobre la muestra. Los resultados de los experimentos realizados diluyendo el  $\text{CH}_3\text{I}$  con  $\text{SF}_6$  y sin filtrar la radia-

ción de bombeo nos van a permitir elucidar este punto. A estos efectos necesitamos en primer lugar describir algunas de las propiedades de transferencia de energía del  $\text{SF}_6$ , Ar y  $\text{CO}_2$ .

#### 5.1.1.2. Propiedades de transferencia de energía del Ar, $\text{CO}_2$ y $\text{SF}_6$

El Ar,  $\text{CO}_2$  y  $\text{SF}_6$  que hemos usado como gases diluyentes presentan diferentes propiedades para la transferencia de energía. Es necesario, por tanto, tener presentes dichas propiedades antes de proceder a discutir acerca de la desactivación del radical metilo con energía en exceso.

Las constantes de velocidad de desactivación del  $\text{CH}_3$  excitado translacionalmente por parte del Ar,  $\text{CO}_2$  y  $\text{SF}_6$  se pueden relacionar por medio de un cálculo aproximado [234]. Dicha aproximación, que toma en cuenta la frecuencia de colisiones y la transferencia de energía cinética por choque, conduce a la expresión [233]:

$$\frac{k_t(\text{Ar})}{k_t(\text{SF}_6)} = \frac{\sigma_{\text{CH}_3-\text{Ar}}^2 \sqrt{\mu_{\text{SF}_6-\text{CH}_3}} \log \left[ 1 - \left( \frac{\Delta E}{E} \right)_{\text{Ar}-\text{CH}_3} \right]}{\sigma_{\text{CH}_3-\text{SF}_6}^2 \sqrt{\mu_{\text{Ar}-\text{CH}_3}} \log \left[ 1 - \left( \frac{\Delta E}{E} \right)_{\text{SF}_6-\text{CH}_3} \right]} \quad (5.5)$$

donde  $k_t(M)$  representa la constante de velocidad de desactivación del  $\text{CH}_3$  excitado translacionalmente por parte del cuerpo M;  $\sigma_{M-N}$  es el diámetro molecular medio de las especies M y N:

$$\sigma_{M-N} = \frac{1}{2} (\sigma_M + \sigma_N) \quad (5.6)$$

$\mu_{M-N}$  es la masa reducida de las especies M y N (cuyas masas representaremos por las mismas letras):



$$\mu_{M-N} = \frac{MN}{M+N} \quad (5.7)$$

$$y \quad \left( \frac{\Delta E}{E} \right)_{M-N} = \frac{2MN}{(M+N)^2} \quad (5.8)$$

Para el  $\text{CO}_2$  se tiene una expresión análoga a la (5.5):

$$\frac{k_t(\text{Ar})}{k_t(\text{CO}_2)} = \frac{\sigma_{\text{CH}_3-\text{Ar}}^2 \sqrt{\mu_{\text{CO}_2-\text{CH}_3}} \log \left[ 1 - \left( \frac{\Delta E}{E} \right)_{\text{Ar}-\text{CH}_3} \right]}{\sigma_{\text{CH}_3-\text{CO}_2}^2 \sqrt{\mu_{\text{Ar}-\text{CH}_3}} \log \left[ 1 - \left( \frac{\Delta E}{E} \right)_{\text{CO}_2-\text{CH}_3} \right]} \quad (5.9)$$

Usando los valores de los pesos moleculares:

$$\text{Ar} = 40; \quad \text{SF}_6 = 146; \quad \text{CH}_3 = 15; \quad \text{CO}_2 = 44$$

y de los diámetros de las moléculas [235] :

$$\sigma_{\text{SF}_6} = 5,51 \text{ \AA}; \quad \sigma_{\text{Ar}} = 3,42 \text{ \AA}; \quad \sigma_{\text{CO}_2} = 3,99 \text{ \AA}; \quad \sigma_{\text{CH}_3} \approx \sigma_{\text{CH}_4} = 3,82 \text{ \AA}$$

se tiene de (5.5) y (5.9) :

$$\frac{k_t(\text{Ar})}{k_t(\text{SF}_6)} = 1,83 \quad (5.10)$$

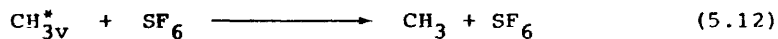
$$\frac{k_t(\text{Ar})}{k_t(\text{CO}_2)} = 0,92 \quad (5.11)$$

relaciones que nos indican que el  $\text{CO}_2$  y el Ar presentan una eficacia desactivadora similar para los radicales metilo traslacionalmente excitados, y son, aproximadamente, dos veces mejores desactivadores traslacionales que el  $\text{SF}_6$ .

La transferencia de energía  $V \longrightarrow V$  (vibracional-vibracional) es mucho más rápida que la transferencia  $V \longrightarrow T$  (vibracional-traslacional) [32] , [236] :  $\approx 10^4$  veces más rápida cuando se trata de una transferencia resonante y uno o dos órdenes de magnitud más rápida cuando la transferencia no es resonante (como es el caso del  $SF_6$  y  $CO_2$  con respecto al radical  $CH_3$ ). Por tanto, el  $SF_6$ , como gas poliatómico, debe ser un desactivador vibracional mucho más eficiente que el Ar, puesto que con  $SF_6$  se puede tener transferencia  $V \longrightarrow V$  mientras que con el Ar sólo es posible la transferencia más lenta  $V \longrightarrow T$ . El  $CO_2$ , con menos grados de libertad que el  $SF_6$ , es de esperar que sea un desactivador vibracional de eficiencia intermedia entre el Ar y el  $SF_6$ .

#### 5.1.1.3. Efecto termalizador del $SF_6$

De acuerdo con lo visto en el apartado anterior el  $SF_6$  es un desactivador vibracional muy eficiente, de modo que su presencia en el medio en grandes proporciones debería termalizar los radicales metilo vibracionalmente excitados:



En consecuencia, si la interpretación dada en el apartado 5.1.1.1 es correcta la presencia de  $SF_6$  en el medio en proporciones adecuadas debería producir efectos similares a los del filtro. En efecto, cuando se utiliza  $CH_3I$  diluido en  $SF_6$  en las proporciones 1:9 y 1:3 y no se filtra la radiación de bombeo, se encuentra operación láser repetitiva (apartado 4.2.2.4): un máximo de cuatro emisiones láser consecutivas a la menor energía de des-

carga. Se obtiene asimismo una notable reducción en los productos formados vía radical vibracionalmente excitado (tablas XXVI y XXVII del apartado 5.1.4). El uso simultáneo de  $\text{SF}_6$  y filtro origina una ulterior reducción en los productos de fotodescomposición. Parece, pues, clara la existencia de un efecto adicional a la reducción de luz de bombeo absorbida. Bajo similares condiciones, y en ausencia de filtro, no se obtiene operación láser repetitiva cuando el gas diluyente es Ar o  $\text{CO}_2$  o, incluso, cuando se utiliza  $\text{SF}_6$  en pequeñas proporciones (1:1), así como cuando se utiliza  $\text{CH}_3\text{I}$  sin diluir en un gas inerte, y la duración de la emisión láser disminuye notablemente (apartado 4.2.2.2), consecuencia del aumento de la desactivación del iodo excitado  $\text{I}^*$  por los productos de la fotólisis originados por la más alta descomposición inducida por el radical metilo vibracionalmente excitado (este aspecto se trata con detalle en el apartado 5.1.4.1).

La evidencia hasta ahora presentada apoya fuertemente la participación de diferentes longitudes de onda en la fotólisis del  $\text{CH}_3\text{I}$ . Para longitudes de onda por encima de 220 nm se forman radicales metilo relativamente no reactivos. Ya hemos mencionado la baja velocidad de abstracción de hidrógeno (reacción (5.2)) por parte del radical metilo traslacionalmente excitado [114], y concluimos que ésta es la especie formada a estas longitudes de onda largas. Por otro lado, la irradiación con todo el arco de xenon forma radicales metilo vibracionalmente excitados que abstraen hidrógeno (reacción (5.2)) muy eficientemente. En otro contexto, los resultados experimentales de las medidas de ganancia a altas energías de descarga, que se discuten en el apartado 5.1.4.4.2, aportan pruebas adicionales a favor del mecanismo indicado.

En este contexto, la carencia de operación láser repetitiva (a la energía de descarga de 538 J) cuando se utilizan simultáneamente filtro y  $SF_6$  (apartado 4.3.2.2.2) puede resultar un tanto sorprendente. Clarificaremos este punto en el apartado 5.1.3, donde mostraremos nuevas evidencias acerca del cambio de mecanismo con la longitud de onda de irradiación.

#### 5.1.2. Efecto de la longitud de onda de irradiación sobre la emisión láser

Una vez que hemos elucidado el efecto de la longitud de onda de irradiación sobre la fotólisis pasaremos a investigar sus efectos sobre la emisión láser. A este respecto vamos a considerar los resultados experimentales obtenidos usando  $CH_3I$  puro como sustrato a la energía de descarga de 538 J (apartados 4.3.2.2.1 y 4.4.2.2). Consideremos en primer lugar los datos aportados por la medida de la ganancia. La ganancia de pequeña señal viene dada por la expresión:

$$G = \exp (\sigma \cdot \Delta N \cdot L) \quad (5.13)$$

tal como hemos visto en el apartado 1.1.4. Como  $\sigma$  y  $L$  son independientes de la presencia o ausencia de filtro, el cambio que ocurre en el valor de la ganancia cuando eliminamos el filtro debe ser motivado por un cambio en la inversión de población  $\Delta N$ . Por tanto, la más alta ganancia observada en los experimentos que incluyen las longitudes de onda cortas ha de ser debida a un incremento en la inversión de población. Esta formación adicional de inversión de población cuando no se filtra la radiación de bombeo se ve reflejada en el adelanto del comienzo de la señal

láser (o sea, el umbral de emisión se alcanza a menores intensidades del destello). La supresión de los fotones de longitud de onda por debajo de 220 nm hace necesario un suministro adicional de fotones de longitud de onda larga a fin de compensar las pérdidas y alcanzar el umbral. El sistema obtiene este suministro extra "esperando" hasta que la intensidad del destello alcanza un valor más alto. La reducción de la duración del pulso láser cuando no se filtra la radiación de bombeo con respecto al caso en que se filtra es debida al aumento de la desactivación del  $I^*$  por los productos de la fotólisis. Tal como indicamos en el apartado anterior, estos productos se originan por la mayor descomposición inducida por los radicales metilo vibracionalmente excitados (apartado 5.1.4.1 y tablas XXVI y XXVII).

Los efectos reseñados suministran pruebas de que las longitudes de onda cortas producen un bombeo efectivo (incrementan la inversión de población), lo que se ve reflejado en la ganancia. Los resultados obtenidos no se pueden adscribir a un bombeo químico tal como el indicado por la reacción (2.15) (apartado 2.2.3): en el apartado 5.1.4.2.2 razonaremos la no existencia en nuestro caso de tal bombeo químico.

Al igual que ocurría en el apartado precedente, los resultados obtenidos (en cuanto a duración de la emisión láser) filtrando la radiación de bombeo y diluyendo el  $CH_3I$  en Ar o  $SF_6$  (apartado 4.3.2.2) pueden resultar un tanto sorprendentes y aparentemente contradecir la interpretación anterior. En el apartado 5.1.4.3 mostraremos la consistencia de estos resultados con la interpretación dada.

### 5.1.3. Operación repetitiva láser y ganancia

Otra prueba acerca de un cambio en el mecanismo del láser con la longitud de onda del bombeo es suministrada por las observaciones de operación láser repetitiva. Si la relación entre descomposición y operación láser repetitiva (o sea, a más descomposición menor probabilidad de obtener emisiones láser consecutivas) obtenida en los experimentos sin filtro (apartado 5.1.1.3) se mantuviese cuando se filtra la radiación de bombeo, sería de esperar que, en este caso, la mayor efectividad para a dicha operación repetitiva se obtuviese cuando el  $\text{CH}_3\text{I}$  se diluye en  $\text{SF}_6$ , debiendo ser incluso más efectiva una mezcla de  $\text{CH}_3\text{I}$  y Ar que el uso de  $\text{CH}_3\text{I}$  puro. De hecho se encuentra el efecto contrario: mientras que se obtienen 23 láseres consecutivos cuando se emplea  $\text{CH}_3\text{I}$  sin diluir en un gas moderador, no se obtiene operación repetitiva cuando el  $\text{CH}_3\text{I}$  se diluye en  $\text{SF}_6$  o Ar (mientras no digamos lo contrario nos referimos a experimentos a 538 J de energía de descarga), tal como se mostró en el apartado 4.3.2.2.2.

Estos resultados son, no obstante, fácilmente explicables en cuanto se tienen en cuenta los requerimientos necesarios para obtener oscilación láser. Un láser, a fin de emitir, tiene que sobrepasar el umbral de ganancia fijado por las pérdidas de la cavidad; valor umbral que en nuestro caso es  $G_t = 1,4 \pm 0,1$  (apartado 4.4.2.2). Ahora bien, en la operación láser se forman después del primer disparo algunos productos desactivadores como consecuencia de la fotólisis inducida por los destellos. En consecuencia, a fin de que se produzca nueva emisión láser el sistema debe vencer estas "pérdidas químicas" adicionales introducidas en el mismo. En otras palabras, después de la primera emisión láser el umbral de ganancia se incrementa. La aparición de estas pérdi-

das "químicas" adicionales se aprecia en los casos en que hay operación láser repetitiva; en las emisiones láser consecutivas se va retardando el tiempo de comienzo y adelantando el tiempo a que terminan así como disminuyendo ligeramente el valor máximo de intensidad (figuras 51-55, apartado 4.2.2.4, o figura 58, apartado 4.3.2.2.2; ver también el apartado 5.1.5).

La ecuación de ganancia de pequeña señal (5.13) nos va a suministrar entonces la base necesaria para discutir este problema. Esta ecuación, donde  $L$  es la longitud del medio activo, relaciona la ganancia con el producto de la sección eficaz de emisión estimulada  $\sigma$  y la inversión de población  $\Delta N$  (tal como se ha explicado en el apartado 4.4.1.2 el valor de  $\Delta N$  correspondiente a nuestras medidas de ganancia es el máximo de inversión de población que produce un bombeo dado). Estamos, pues, en posición de explicar la operación repetitiva o la carencia de ella en términos de  $\sigma$  y de  $\Delta N$ .

La presencia de gases diluyentes tiene dos importantes efectos. Uno de ellos es la disminución del valor de  $\sigma$  por ensanchamiento colisional (apartado 2.2.2.2) con la consiguiente disminución de la ganancia. El otro consiste en un incremento del valor de la inversión de población debido a los efectos moderadores del gas diluyente (que en el caso que estamos considerando en que se filtra la radiación de bombeo consisten principalmente en la eliminación de iodo en el estado fundamental, apartado 5.1.4.2.2), lo que permite continuar el crecimiento de la inversión de población a tiempos más largos (figura 76, apartado 5.2.2.2). La pérdida de ganancia originada por el primer efecto es compensada parcial-

mente por el segundo efecto, con el resultado neto de que la ganancia es ligeramente mayor para  $\text{CH}_3\text{I}$  puro que para  $\text{CH}_3\text{I}$  diluido en Ar o  $\text{SF}_6$  (apartado 4.4.2.2). Esta diferencia en la ganancia cuantitativamente pequeña puede ser, sin embargo, significativa si tenemos en cuenta que el láser oscila, en las presentes condiciones, a ganancias próximas a la umbral. Entonces, la caída inicial de la ganancia después del primer disparo, que debe ser más marcada que dicha caída en los disparos subsiguientes [103], es suficiente para impedir la obtención de emisiones láser consecutivas en los experimentos con Ar y  $\text{SF}_6$ .

A fin de comprobar este punto incrementamos la ganancia usando un destello más energético (aumentando la energía de descarga a 1197 J) susceptible, por tanto, de formar inversión de población adicional. Como era de esperar, obtuvimos operación láser repetitiva tanto cuando el gas diluyente fue  $\text{SF}_6$  como cuando fue Ar (apartado 4.3.2.2.2), pero solamente se lograron dos emisiones láser consecutivas. Obviamente, nuestro argumento es cualitativamente correcto pero algún mecanismo adicional está operando en la misma dirección, tal como veremos en el apartado 5.1.6.

Cuando se utiliza una mezcla de  $\text{CH}_3\text{I}$  y  $\text{SF}_6$  en la proporción 1:1, a la energía de descarga de 538 J, y se filtra la radiación de bombeo, la señal láser que se obtiene es idéntica que cuando se utiliza  $\text{CH}_3\text{I}$  puro en las mismas condiciones, obteniéndose, asimismo, operación láser con las mismas características que cuando se usa  $\text{CH}_3\text{I}$  puro. Este resultado es consistente con los argumentos expuestos arriba y los avala en cierto sentido: todo ocurre como si, efectivamente, la cantidad presente de  $\text{SF}_6$  no



fuera suficiente como para dejar notar sus efectos de manera apreciable, de manera análoga a lo ya expuesto en el apartado 5.1.1.3, donde veíamos que la presencia del  $SF_6$  en la proporción 1:1 era insuficiente, en el caso en que no se filtraba la radiación de bombeo, para conseguir la aparición de operación láser repetitiva.

Naturalmente, en ausencia de filtro la descomposición es, como ya indicamos en el apartado 5.1.1.3 y analizaremos en el apartado 5.1.4.1, mucho mayor que en presencia del mismo y las pérdidas "químicas" adicionales introducidas en el sistema después de la primera descarga eliminan la posibilidad de la obtención de emisiones láser consecutivas, excepto cuando la presencia del  $SF_6$  en grandes proporciones reduce dichas pérdidas "químicas" en proporción suficiente. En este caso, además, el número de emisiones láser consecutivas disminuye al aumentar la energía de descarga, lo que es una consecuencia de que la ganancia no solo no aumenta con la energía de descarga, sino que, en todo caso, disminuye ligeramente (apartado 4.4.2.2, tablas XXIV, XXV). Este punto se trata con más detalle en el apartado 5.1.4.4.2.

#### 5.1.4. Efecto sobre la operación láser de la adición de gases inertes y de la variación de la energía de descarga

##### 5.1.4.1. Excitación vibracional frente a excitación traslacional

En los experimentos realizados modificando la velocidad de bombeo a una energía de descarga determinada (sección 4.1) habíamos obtenido indicaciones acerca de la importancia de los productos desactivadores so-

bre la emisión láser. En el análisis efectuado en el apartado 4.1.2 habíamos llegado a la conclusión de que, si bien el efecto desactivador del yodo excitado por parte del sustrato es muy importante, también es necesario considerar el efecto de otros productos desactivadores formados en la fotólisis. En este contexto, hemos presentado en los apartados anteriores pruebas acerca de la importancia de la longitud de onda de bombeo sobre la operación láser y hemos sugerido la importancia de la actuación de los radicales metilo "calientes" formados, fundamentalmente, en la fotólisis a longitudes de onda cortas (por debajo de 200 nm) sobre el mecanismo del láser. Vamos ahora a considerar más detenidamente este punto para lo que necesitaremos los resultados correspondientes a los productos de la fotólisis, que hemos resumido en las tablas XXVI y XXVII.

La más alta descomposición encontrada en los experimentos en que no se filtra la radiación de bombeo ( $\lambda > 165$  nm, tablas XXVI y XXVII) se adscribe a dos factores ya mencionados. El primero es el incremento de la luz del destello absorbida por el  $\text{CH}_3\text{I}$ . El segundo es un aumento en el rendimiento cuántico de fotodescomposición debido al depósito de más energía sobre los fragmentos iniciales, haciéndolos más reactivos e incrementando, por tanto, las reacciones secundarias.

En el resto de este apartado vamos a referirnos únicamente a los experimentos a la menor energía de descarga. Aunque las tendencias son las mismas para todos los experimentos, la participación de los productos de fotólisis oscurece algo los resultados a las energías más altas. El segundo factor mencionado arriba se adscribe a la formación a las más cortas longitudes de onda de radicales metilo vibracionalmente

TABLA XXVI

Productos de descomposición del laser de Iodo con  $\text{CH}_3\text{I}$  como medio activo [233] . Los datos son porcentajes sobre el  $\text{CH}_3\text{I}$  inicial calculados sobre el volumen iluminado de la cámara de reacción.

ENERGIA DE DESCARGA (J)	CONDICIONES		$\text{CH}_3\text{I}$	$\text{CH}_4$	$\text{C}_2\text{H}_6$	$\frac{\text{CH}_4}{\text{C}_2\text{H}_6}$	$\text{C}_2\text{H}_4$
	SUSTRATO	BOMBEO a)					
500	$\text{CH}_3\text{I}$ puro	$\lambda > 165\text{nm}$	56,68	19,32	6,20	3,12	12,47
538	$\text{CH}_3\text{I}$ puro	$\lambda > 220\text{nm}$	6,01	0,12	2,97	0,040	b) —
500	$\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$ 1:9	$\lambda > 165\text{nm}$	9,35	0,89	3,57	0,25	0,66
538	$\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$ 1:9	$\lambda > 220\text{nm}$	2,67	0,039	1,29	0,030	b) —
500	$\text{CH}_3\text{I}/\text{Ar}$ 1:9	$\lambda > 165\text{nm}$	13,9	2,0	5,4	0,37	0,54
538	$\text{CH}_3\text{I}/\text{Ar}$ 1:9	$\lambda > 220\text{nm}$	5,2	0,019	2,23	0,085	b) —

a) Longitud de onda de la radiación de bombeo. b) Sólo hay trazas presentes en el medio.

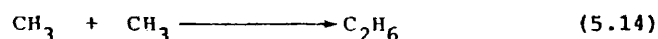
TABLA XXVII

Productos de descomposición del laser de Iodo con  $\text{CH}_3\text{I}$  como medio activo [233] . Los datos son porcentajes sobre el  $\text{CH}_3\text{I}$  inicial calculados sobre el volumen iluminado de la cámara de reacción.

ENERGIA DE DESCARGA (J)	CONDICIONES		$\text{CH}_3\text{I}$	$\text{CH}_4$	$\text{C}_2\text{H}_6$	$\frac{\text{CH}_4}{\text{C}_2\text{H}_6}$	$\text{C}_2\text{H}_4$
	SUSTRATO	BOMBEO <sup>a)</sup>					
1100	$\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$ 1:9	$\lambda > 165\text{nm}$	20,3	2,54	6,99	0,36	1,76
1197	$\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$ 1:9	$\lambda > 220\text{nm}$	8,26	0,034	4,29	0,008	b) —
1100	$\text{CH}_3\text{I}/\text{Ar}$ 1:9	$\lambda > 165\text{nm}$	73,2	30,87	6,81	4,5	15,95
1197	$\text{CH}_3\text{I}/\text{Ar}$ 1:9	$\lambda > 220\text{nm}$	11,3	0,046	5,2	0,0088	b) —
1100	$\text{CH}_3\text{I}$ puro	$\lambda > 165\text{nm}$	$\approx 100$	35,82	0,30	120,0	5,9

a) Longitud de onda de la radiación de bombeo. b) Solamente hay trazas presentes en el medio.

excitados [230] . La producción de este radical explica el notable descenso en la descomposición cuando están presentes los gases diluyentes. En los experimentos a  $\lambda > 165$  nm la presencia de  $\text{SF}_6$  reduce la fotodescomposición en un factor de  $\approx 6$  y la presencia de Ar en un factor de  $\approx 4$  (Tabla XXVI). Este mayor efecto del desactivador vibracional  $\text{SF}_6$  frente al desactivador traslacional Ar está de acuerdo con nuestras hipótesis previas. La razón de la abstracción de hidrógeno (5.2), una reacción característica de los radicales vibracionalmente excitados, a la recombinación de los radicales metilo:



que es una reacción "fría", debería corresponderse con la razón  $\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_6$  (tabla XXVI). Esta razón sigue el orden  $\text{CH}_3\text{I} \gg \text{CH}_3\text{I}/\text{Ar} > \text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$ , como sería de esperar de un radical vibracionalmente "caliente". El efecto moderador del  $\text{SF}_6$  tiene repercusión sobre la oscilación láser, como ya expusimos en el apartado 5.1.1.3: en presencia de 54 Torr de  $\text{SF}_6$  aparece operación repetitiva láser cuando no se filtra la radiación de bombeo. Bajo similares condiciones no se obtiene operación repetitiva con Ar,  $\text{CO}_2$  o sin gas diluyente. Parece, pues, clara la adscripción de esta mejora en la emisión láser a la desactivación vibracional del radical  $\text{CH}_3$  "caliente" por parte del  $\text{SF}_6$ .

En los experimentos con filtro ( $\lambda > 220$  nm) las tendencias de la fotodescomposición son similares, si bien suavizadas. El  $\text{SF}_6$  reduce la fotodescomposición 2,6 veces y el Ar solamente 1,4. No obstante, la razón  $\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_6$  no sigue el mismo modelo que anteriormente: las razones a 538 J

de energía de descarga están en el orden  $\text{CH}_3\text{I} > \text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6 > \text{CH}_3\text{I}/\text{Ar}$ . Es, no obstante, cuestionable si este orden se mantiene a las más altas energías de descarga, donde el Ar y el  $\text{SF}_6$  parecen tener efectos muy similares sobre la razón  $\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_6$ . Estos resultados contradicen parcialmente los resultados de la descomposición: siendo el Ar un mejor desactivador traslacional del  $\text{CH}_3$  que el  $\text{SF}_6$ , como se aprecia en la comparación entre las razones no es, sin embargo, un mejor gas diluyente desde el punto de vista de la descomposición. Este resultado indica que la descomposición vía radicales calientes no es aquí, probablemente, predominante. Esto no es sorprendente, puesto que tanto la concentración como la energía de los radicales  $\text{CH}_3$  formados a  $\lambda > 220$  nm deberían ser menores que a  $\lambda > 165$  nm. Por tanto, su participación en la descomposición secundaria no debería ser muy importante.

#### 5.1.4.2. Comienzo de la emisión láser

Hemos visto que la presencia de gases diluyentes influye en el mecanismo que subyace en la operación láser. Sería, pues, de esperar que la presencia o ausencia de un gas diluyente así como la proporción del mismo afectase al comienzo de la emisión láser, o sea, al tiempo a que se alcanza la inversión de población umbral. Si bien esto ocurre así cuando se filtra la radiación de bombeo, en los experimentos a  $\lambda > 165$  nm apenas si se observa una tal influencia. Conviene, pues, analizar este punto con algo más de detalle. A estos efectos vamos a hacer en primer lugar algunas consideraciones acerca de la ganancia y las pérdidas en la cavidad láser; consideraciones que nos serán útiles en la discusión posterior.

5.1.4.2.1. El coeficiente de ganancia y las pérdidas en la cavidad

El coeficiente de ganancia  $\gamma$ , que introdujimos en el apartado 1.1.4, se relaciona con la sección eficaz de emisión estimulada por medio de la expresión:

$$\gamma = \sigma \cdot \Delta N \quad (5.15)$$

de modo que en la aproximación de pequeña señal la ganancia  $G$  viene dada por:

$$G = \exp (\gamma \cdot L) \quad (5.16)$$

En el umbral de oscilación láser se tiene, pues:

$$\gamma_t = \sigma \cdot \Delta N_t \quad (5.17)$$

donde con el subíndice  $t$  representaremos el umbral.

Por otro lado, de la condición de oscilación láser se obtiene que, en el umbral [4-a] :

$$\gamma_t = \alpha - \frac{1}{L} \ln r_1 r_2 \quad (5.18)$$

donde  $\alpha$  es un coeficiente de absorción distribuido sobre todo el medio debido a todos los mecanismos de pérdidas excepto la transición resonante láser (o sea,  $\alpha$  es una constante promedio de pérdidas distribuida sobre el medio),  $L$  es la longitud de la cavidad y  $r_1, r_2$  son las reflectancias de los espejos que cierran a ambos lados la cavidad (de modo que, llamando  $R_1, R_2$  a las reflectividades de los espejos,  $R_1 = r_1^2, R_2 = r_2^2$ ). El significado de (5.18) queda claro en el siguiente ejemplo. Consideremos un lá-

ser de baja ganancia con iguales reflectividades en los espejos:  $R_1 = R_2 \equiv R \approx 1$  (que es, aproximadamente, nuestro caso). Entonces,  $-\ln r_1 r_2 = -\ln \sqrt{R_1 R_2} \approx T$ , donde  $T = 1-R$  es la transmitividad de cada espejo. En este caso, pues,  $-\ln r_1 r_2$  representa la fracción de potencia interna acoplada como salida. En el mismo límite,  $\alpha L$  es la pérdida fraccional en intensidad por paso y  $\gamma_t L$  es la ganancia fraccional por paso en el umbral. Por tanto, y de acuerdo con (5.18), para unos valores dados de  $r_1, r_2$  el coeficiente de ganancia umbral  $\gamma_t$  depende únicamente de las pérdidas en la cavidad. En consecuencia, si  $\sigma$  se mantiene constante la expresión (5.17) nos indica que  $\Delta N_t$  depende únicamente de las pérdidas de la cavidad.

Experimentalmente se obtiene de un modo muy sencillo una confirmación de que  $\gamma_t$  depende únicamente de las pérdidas en la cavidad. Cuando introducimos en la cavidad óptica un cubreobjetos de microscopio a fin de incrementar las pérdidas en la misma (apartado 4.4.1.1) el comienzo de la señal láser se retrasa tanto más cuanto mayores son las pérdidas introducidas. En este caso  $\sigma$  no se ha modificado, puesto que se han mantenido las mismas condiciones en la vasija láser. Ha variado, pues,  $\Delta N_t$  en el sentido de aumentar, de modo que es necesario más tiempo de bombeo en las mismas condiciones a fin de alcanzar el nuevo umbral.

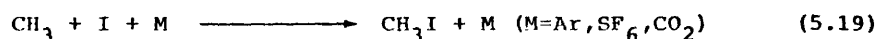
#### 5.1.4.2.2. Efecto moderador del gas diluyente

Hemos venido hablando repetidamente en apartados anteriores acerca del efecto moderador ejercido por los gases diluyentes sobre los productos de la fotólisis. Ha llegado el momento de considerar con más detalle los mecanismos de actuación de dichos gases diluyentes, puesto



que estos mecanismos nos van a permitir explicar la diferencia en los efectos observados sobre el comienzo de la emisión láser dependiendo de que se filtre o no la radiación de bombeo.

El efecto del gas diluyente es doble. Por un lado, de acuerdo con la discusión sostenida a lo largo de los apartados anteriores (especialmente 5.1.1.3 y 5.1.4.1) modera la aparición de desactivadores producidos fotolíticamente. Por otro lado, favorece la recombinación de los radicales metilo con iodo en estado fundamental:

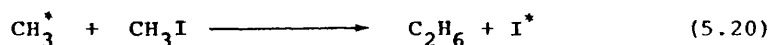


siendo necesaria la presencia de un tercer cuerpo M a fin de estabilizar la molécula, con alta excitación vibracional, producida por la recombinación del radical y del átomo de iodo [103]. Si bien también ocurre una reacción similar a la (5.19) con iodo excitado, la constante de velocidad de esta reacción es más de diez veces mayor cuando la recombinación ocurre con iodo fundamental que cuando ocurre con iodo excitado [54], [140], [141].

Consideremos el caso en que se filtra la radiación de bombeo y la energía de descarga es de 538 J. Como la ganancia cuando se emplea  $\text{SF}_6$  como gas diluyente es la misma que cuando se emplea Ar (apartado 4.4.2.2, tabla XXIV), esto quiere decir que, de acuerdo con la expresión (5.13), el producto  $\sigma \cdot \Delta N_0$  vale lo mismo en ambos casos (llamamos  $\Delta N_0$  al valor máximo de la inversión de población que produce un bombeo dado, apartado 4.4.1.2). El empleo del filtro convierte en redundante la acción de los gases inertes sobre los radicales calientes, de modo que la acción de los gases diluyentes tiene lugar principalmente sobre la recombinación (5.19)

Cuando se emplea  $\text{SF}_6$  como gas diluyente en la proporción 1:9 la sección eficaz de emisión estimulada vale  $\sigma = 2,3 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ , y cuando se emplea Ar en la misma proporción,  $\sigma = 2,5 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$  (apartado 5.2.2.3, tabla XXXIII). Como, según hemos mostrado arriba,  $\sigma \Delta N_0$  tiene el mismo valor en ambos casos, se tiene que la presencia de  $\text{SF}_6$  origina un valor de  $\Delta N_0$  más alto que cuando el gas diluyente es Ar, lo que está de acuerdo con el hecho de que el  $\text{SF}_6$  es mejor tercer cuerpo que el Ar a la hora de favorecer la reacción de recombinación (5.19).

Cuando eliminamos el filtro la ganancia, si bien aumenta, sigue siendo muy similar tanto cuando se emplea  $\text{SF}_6$  como moderador como cuando se emplea Ar. Esto elimina la posibilidad de la existencia de un bombeo químico como el que originaría la reacción (2.15) del apartado 2.2.3:



propuesta, como se indicó entonces, por algunos autores y que es favorecida cuando los radicales metilo tienen altas energías. Si esta reacción tuviese lugar la presencia de  $\text{SF}_6$ , que es un desactivador vibracional muy efectivo, cuando no se filtra la radiación de bombeo disminuyendo la concentración de radicales metilo "calientes" provocaría una disminución de la ganancia con respecto al caso en que el gas moderador es Ar.

#### 5.1.4.2.3. Efecto del gas diluyente sobre la velocidad con que varía la inversión de población

De lo dicho en el apartado 5.1.4.2.1 se desprende inmediatamente que si las pérdidas en la cavidad se mantienen constantes el coeficien

te de ganancia  $\gamma_t$  también se mantiene constante, de modo que cualquier modificación en  $\sigma$  (conseguida, por ejemplo, mediante la adición de un gas diluyente al medio activo) implica una modificación en  $\Delta N_t$  en sentido contrario: si  $\sigma$  disminuye  $\Delta N_t$  debe aumentar, y viceversa. Según se va añadiendo gas diluyente al medio activo va disminuyendo la sección eficaz de emisión estimulada por efecto de ensanchamiento colisional (apartado 2.2.2.2) de modo que, de acuerdo con el razonamiento hecho arriba,  $\Delta N_t$  de aumentar puesto que no se han modificado las pérdidas en la cavidad (tabla XXXIII, apartado 5.2.2.3). A pesar de esto se encuentra experimentalmente que cuando no se filtra la radiación de bombeo la adición de un gas diluyente hasta proporciones 9:1 con respecto al medio activo apenas produce variaciones en el comienzo de la emisión láser (naturalmente, a una energía de descarga determinada, apartado 4.2.2.1, tablas IV-XIII). En cambio, cuando se filtra la radiación de bombeo la señal sí que experimenta retardos notables en su comienzo cuando el medio activo se diluye en Ar o  $\text{SF}_6$  (apartado 4.3.2.2.1, tablas XIX-XXII).

Como en presencia de gases diluyentes la inversión de población umbral  $\Delta N_t$  es mayor que en ausencia de los mismos, a fin de que la emisión láser comience a tiempos similares en ambos casos es preciso que la inversión de población varíe más rápidamente con el tiempo cuando hay gas diluyente presente que cuando no lo hay. Esto es, pues, lo que ocurre cuando no se filtra la radiación de bombeo: la presencia de los gases diluyentes aumenta la velocidad con que varía la inversión de población a una energía de descarga dada. Cuando se filtra la radiación de bombeo aparece en cambio un retraso en el comienzo de la emisión láser en presencia de gases diluyentes. Naturalmente, la presencia del filtro eliminando las lon-

gitudes de onda de la radiación de bombeo por debajo de 220 nm reduce el bombeo, lo que implica una disminución de la velocidad con que varía la inversión de población. Este efecto es aparente en el hecho del retardo en el comienzo de la emisión láser cuando se usa  $\text{CH}_3\text{I}$  puro como sustrato y se filtra la radiación de bombeo con respecto al caso en que no se utiliza filtro. Ahora bien, la presencia de Ar o  $\text{SF}_6$  retrasa aún más el comienzo de la emisión láser, en un comportamiento claramente distinto del correspondiente al caso en que no se filtra la radiación de bombeo.

Del doble efecto ejercido por las gases diluyentes, discutido en el apartado anterior, la actuación sobre la recombinación (5.19) tiene lugar tanto en presencia como en ausencia de filtro, mientras que la actuación sobre los radicales metilo vibracionalmente excitados solo tiene lugar en ausencia de filtro. Consideremos el caso en que el gas diluyente es  $\text{SF}_6$ . La presencia de  $\text{SF}_6$  en ausencia de filtro causa la desactivación de los radicales metilo vibracionalmente excitados (que llamaremos  $(\text{CH}_3)_v$ ). Los radicales fríos así formados eliminan todo fundamental a través de (5.19), reacción que es, a su vez, favorecida por la presencia de  $\text{SF}_6$ . Esto se traduce en un incremento de la inversión de población y de la velocidad con que esta varía. Tal como hemos visto en el apartado 5.1.1.1, la presencia del filtro impide la aparición de radicales  $(\text{CH}_3)_v$ , de modo que la energía se deposita ahora sobre los radicales metilo en forma predominantemente traslacional (indicaremos estos radicales metilo en la forma  $(\text{CH}_3)_t$ ). Ahora bien, el  $\text{SF}_6$  es menos efectivo desactivando radicales  $(\text{CH}_3)_t$  que radicales  $(\text{CH}_3)_v$  (apartado 5.1.1.2), de modo que el proceso de desactivación de los radicales

$(\text{CH}_3)_t$  por parte del  $\text{SF}_6$  es más lento que el proceso de desactivación de los radicales  $(\text{CH}_3)_v$ . Esto se traduce en que la acción de la reacción (5.19) sobre la inversión de población no se deja sentir hasta tiempos más tardíos que en el caso en que no se filtra la radiación de bombeo: ahora no aumenta la velocidad con que varía la inversión de población sino que, simplemente, se alcanza una inversión de población más alta a tiempos más largos que cuando se usa  $\text{CH}_3\text{I}$  puro (o sea, el valor máximo  $\Delta N_0$  de la inversión de población es mayor que cuando se usa  $\text{CH}_3\text{I}$  puro y se alcanza a tiempos posteriores). Esta acción más tardía del  $\text{SF}_6$  sobre la inversión de población a través de la reacción de recombinación (5.19) queda reflejada claramente en los experimentos a 1197 J de energía de descarga (apartado 5.1.4.3.2). En la figura 76, apartado 5.2.2.2, que proporciona inversiones de población calculadas por el procedimiento descrito en el apartado citado, se aprecian claramente los efectos descritos en ambos casos, filtrando y sin filtrar la radiación de bombeo.

Cuando, filtrando la radiación de bombeo, se emplea Ar como diluyente, la señal láser comienza algo antes que cuando se emplea  $\text{SF}_6$  (tabla XX, apartado 4.3.2.2), lo que es consecuente con el hecho de que, tal como se mostró en el apartado 5.1.1.2, el Ar es casi dos veces mejor desactivador traslacional que el  $\text{SF}_6$ .

Hemos ejemplificado lo que ocurre cuando no se filtra la radiación de bombeo argumentando con los resultados correspondientes al caso en que se emplea  $\text{SF}_6$  como gas diluyente. Los resultados obtenidos con los otros gases diluyentes no hacen más que confirmar el mecanismo descrito. Cuando el gas utilizado es Ar hay que tener en cuenta que, si bien el Ar es menos efectivo que el  $\text{SF}_6$  en la desactivación vibracional, también ori

gina un menor ensanchamiento colisional, de modo que la sección eficaz de emisión estimulada es mayor en presencia de Ar que en presencia de  $\text{SF}_6$ , lo que se traduce en que el incremento del valor de la inversión umbral  $\Delta N_t$  es menor con Ar que con  $\text{SF}_6$  (apartado 5.2.2.3, tabla XXXIII). Con esta idea en la mente comparemos los resultados obtenidos en presencia de Ar y en presencia de  $\text{SF}_6$  (apartado 4.2.2, tablas V-VII y XI-XIII). Vemos que, si bien las diferencias son muy pequeñas, cuando la mezcla del  $\text{CH}_3\text{I}$  con el gas diluyente es en la proporción 1:1 la señal tiende a comenzar antes cuando se usa  $\text{SF}_6$  que cuando se usa Ar; cuando la mezcla es 1:3 las señales comienzan al mismo tiempo en ambos casos, y cuando la mezcla es 1:9 la señal tiende a comenzar antes cuando se emplea Ar que cuando se emplea  $\text{SF}_6$  como gas diluyente. Estos resultados se explican simplemente como sigue. A bajas presiones del gas diluyente (mezclas 1:1) la diferencia entre los valores de la inversión de población umbral cuando se emplea  $\text{SF}_6$  y cuando se emplea Ar no es demasiado grande (tabla XXXIII, apartado 5.2.2.3 : de hecho, los valores suministrados en la tabla para ambos gases diluyentes coinciden en este caso) de modo que el efecto del  $\text{SF}_6$  sobre los radicales metilo calientes con el consiguiente incremento de la velocidad con que varía la inversión de población compensa con creces el mayor valor que tiene  $\Delta N_t$  con respecto al caso del Ar. Cuando se incrementa la presencia del gas diluyente hasta la proporción 1:9, la diferencia entre los umbrales de inversión de población se hace mayor (tabla XXXIII) y la mayor velocidad con que varía la inversión de población en presencia de  $\text{SF}_6$  (figura 76) no es suficiente para compensar el mayor valor de  $\Delta N_t$ , con el resultado de que la señal comienza algo después que en el caso del Ar (excepto a la energía de descarga de 538 J; en cualquier caso, a esta energía de descarga el tiempo de comienzo de la emisión lá-

ser se ha aproximado al del caso del Ar. con respecto a cuando la mezcla es 1:1, lo que indica la tendencia correcta).

El mismo razonamiento se puede aplicar a los resultados obtenidos empleando  $\text{CO}_2$  como gas diluyente (apartado 4.2.2, tablas VIII-X). El  $\text{CO}_2$  tiene un comportamiento sobre los radicales metilo vibracionalmente excitados intermedio entre el del Ar y el del  $\text{SF}_6$ , pero de los tres gases es el que provoca un mayor ensanchamiento colisional y, por tanto, el que da lugar a un mayor valor de  $\Delta N_t$  (tabla XXXIII). La combinación de ambos efectos se traduce en que cuando la mezcla con  $\text{CH}_3\text{I}$  es en la proporción 1:1, la emisión láser comienza al mismo tiempo que cuando el gas diluyente es  $\text{SF}_6$ , pero este comienzo se retrasa cuando la proporción aumenta a 1:3 y 1:9.

Otro efecto que aparece con respecto al comienzo de la emisión láser es que la señal se adelanta en todos los casos al aumentar la energía de descarga. Este es un efecto del bombeo. Como en todos los casos el destello alcanza su valor máximo al mismo tiempo, el aumentar la energía de descarga supone descargar más energía en el mismo tiempo, o sea, aumentar la velocidad de bombeo. Como el valor de la inversión umbral no se modifica al variar la energía de descarga, puesto que las pérdidas en la cavidad permanecen inalteradas, al aumentar la velocidad del bombeo se alcanza antes el valor de  $\Delta N_t$  con el consiguiente adelanto en el comienzo de la emisión láser (ver también a este respecto el apartado 5.1.5).

#### 5.1.4.3. Duración de la emisión láser

La presencia de gases diluyentes va a afectar también a la dura-

ción de la emisión láser, siendo el efecto de los mismos distinto según que se filtre o no la radiación de bombeo. Cuando no se filtra la radiación de bombeo y se usa Ar o  $\text{SF}_6$  como diluyente, la duración de la señal láser aumenta con la proporción del gas diluyente empleado y, dentro de una mezcla determinada, aumenta asimismo al disminuir la energía de descarga (efecto que también ocurre cuando se emplea  $\text{CH}_3\text{I}$  puro). Lo contrario ocurre cuando, en las mismas condiciones, se filtra la radiación de bombeo: la presencia de gas diluyente disminuye la duración de la señal y el incremento de la energía de descarga (en presencia de gases diluyentes) la aumenta.

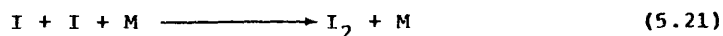
#### 5.1.4.3.1. Efecto de los gases diluyentes

Vamos a discutir en primer lugar el efecto del Ar y del  $\text{SF}_6$  cuando no se filtra la radiación de bombeo. El caso del  $\text{CO}_2$  se considera más adelante. Tal como hemos indicado arriba, los resultados experimentales obtenidos (apartado 4.2.2, tablas IV-VII y X-XIII, figuras 42-50) nos indican que, en todos los casos, la emisión láser a una energía determinada aumenta con la proporción del gas diluyente empleado. Este aumento en la duración de la señal se debe fundamentalmente a un retraso en la terminación de la misma. Estos resultados se comprenden fácilmente a partir del efecto moderador de los gases diluyentes, ya discutido en el apartado 5.1.4.2; efecto que aminora la aparición de productos desactivadores en el medio láser con el consiguiente retraso en el final de la emisión. Según vimos, el efecto del gas moderador es doble: disminuye la cantidad de radicales metilo vibracionalmente excitados, con el consiguiente efecto sobre las reacciones (5.2) y (5.4), y favorece la re



combinación (5.19). En este sentido, la efectividad del  $\text{SF}_6$  sobre ambos procesos va a explicar el gran ensanchamiento que se produce en la emisión láser cuando se usa dicho gas en las proporciones 1:3 y 1:9.

Tal como vimos en el apartado 5.1.4.2.3, la presencia de  $\text{SF}_6$  favorece la eliminación de iodo fundamental a través de la reacción (5.19). Se disminuye de esta manera la formación de iodo molecular a través de reacciones como



ya discutida en el apartado 2.2.3, y las (5.2) y (5.4), y la consiguiente desactivación del iodo excitado por  $\text{I}_2$ , que es un desactivador muy eficiente del  $\text{I}^*$ . Es este efecto del  $\text{SF}_6$  sobre la recombinación (5.19) el principal responsable del gran retardo que experimenta el final de la emisión láser, con el consiguiente incremento en la duración de la misma, cuando se emplea  $\text{SF}_6$  como diluyente en grandes proporciones. En efecto, en los experimentos con filtro y  $\text{CH}_3\text{I}$  puro (apartado 4.3.2.2, tabla XIX) la señal láser retrasa su final e incrementa su duración con respecto al caso en que no se filtra la radiación de bombeo, pero no tanto como cuando, sin filtro, se utiliza  $\text{SF}_6$  en la proporción 1:9 a la misma energía de descarga. El filtro es más efectivo evitando la formación de radicales metilo vibracionalmente excitados que el  $\text{SF}_6$  desactivándolos. Este efecto, no obstante, si bien retrasa el final de la emisión láser, no es capaz, como hemos señalado, de mantener la oscilación tanto tiempo como lo hace la presencia del  $\text{SF}_6$  en grandes proporciones. Si, filtrando la radiación de bombeo, añadimos  $\text{SF}_6$  al medio activo en la proporción 1:9, la señal láser experimenta un nuevo retraso en su terminación, consecuen

cia de la mayor efectividad del  $\text{SF}_6$  como tercer cuerpo para la recombinación. En que la duración de la señal sea en este caso menor que cuando no hay presente gas diluyente se debe al retraso simultáneo que experimenta el comienzo de la misma debido a los efectos ya discutidos en el apartado 5.1.4.2.3.

Volviendo al caso en que no se filtra la radiación de bombeo, queda claro que cuando el  $\text{SF}_6$  está presente en la proporción 1:1 la cantidad del mismo no es suficiente para moderar con eficacia la aparición de productos desactivadores. Es más, en este caso no hay operación láser repetitiva, consecuencia de la acumulación después del primer destello de suficientes productos desactivadores como para que las pérdidas "químicas" adicionales así introducidas en el sistema sean suficientes para impedir nueva oscilación láser (apartado 5.1.3).

La pequeña efectividad del Ar para desactivar los radicales metilo vibracionalmente excitados junto con su menor eficacia que el  $\text{SF}_6$  en promover la recombinación (5.19), hacen que el efecto del Ar sobre la duración y terminación de la señal láser cuando no se filtra la radiación de bombeo sea mucho menos importante que el del  $\text{SF}_6$ , si bien la señal mejora con respecto al caso en que se emplea  $\text{CH}_3\text{I}$  puro. Cuando la proporción de Ar en la mezcla es 1:1 sus efectos son totalmente análogos a los que produce el  $\text{SF}_6$  en las mismas condiciones y la señal apenas experimenta variación con respecto al caso en que se usa  $\text{CH}_3\text{I}$  puro: la cantidad de gas diluyente presente no es suficiente como para que se noten demasiado sus efectos. A mayores concentraciones la presencia de Ar mejora la señal con respecto al caso en que se emplea  $\text{CH}_3\text{I}$  puro pero, por las razones aducidas arriba, mucho menos que la presencia de  $\text{SF}_6$ .

Cuando se filtra la radiación de bombeo la adición de Ar en proporción 1:9 no solamente retrasa el final de la señal láser (apartado 4.3.2.2, tabla XX) sino que, a diferencia de lo que ocurría cuando no se filtraba la radiación de bombeo, retrasa dicho final algo más que el  $\text{SF}_6$ . El que el Ar sea ahora algo más efectivo que el  $\text{SF}_6$  en sus efectos sobre la terminación de la emisión láser se comprende fácilmente a partir de argumentos en la línea de los utilizados en el apartado 5.1.4.2.3, siendo una consecuencia de la mayor efectividad del Ar para desactivar radicales metilo traslacionalmente excitados. En efecto, como en presencia de filtro la energía se deposita sobre los radicales metilo en forma predominantemente traslacional y el Ar es mejor desactivador traslacional que el  $\text{SF}_6$  (apartado 5.1.1.2), se favorece la aparición de radicales fríos que van a actuar en el sentido de eliminar el iodo fundamental a través de la reacción (5.19). La consiguiente disminución en la aparición de iodo molecular ocurre, por tanto, a mayor ritmo en presencia de Ar que en presencia de  $\text{SF}_6$ , compensando la menor efectividad del Ar a la hora de favorecer la recombinación (5.19). Únicamente a tiempos más largos, cuando el efecto de  $\text{SF}_6$  sobre los radicales traslacionalmente excitados iguala al del Ar, se sentiría la mayor efectividad del  $\text{SF}_6$  sobre la recombinación. Tendremos ocasión de volver sobre este punto en el apartado 5.1.4.3.2.

Al igual que ocurría cuando se usaba  $\text{SF}_6$ , aunque la presencia de Ar cuando se filtra la radiación de bombeo retrasa de manera efectiva el final de la emisión láser, la duración de la misma disminuye con respecto al caso en que no se usa un gas diluyente. Este efecto es una consecuencia, como entonces, del retraso simultáneo que experimenta el co-

mienzo de la señal por los motivos ya discutidos en el apartado 5.1.4.2.3.

Cuando el gas diluyente es  $\text{CO}_2$  los efectos sobre la duración de la señal son menos claros (apartado 4.2.2.2, tablas VII-IX), consecuencia de las propiedades moderadoras del  $\text{CO}_2$ , intermedias entre las del Ar y del  $\text{SF}_6$  (apartado 5.1.1.2). Estos efectos un tanto confusos sobre la duración de la emisión láser son una consecuencia de la actuación del  $\text{CO}_2$  sobre el inicio de la emisión láser, ya discutida en el apartado 5.1.4.2.3. Si nos fijamos, en cambio, en la terminación de la emisión láser vemos que, al igual que en los casos del Ar y  $\text{SF}_6$ , el final de la emisión láser, a una energía determinada, se retrasa al aumentar la proporción de gas diluyente (la única anomalía aparece en la mezcla 1:3 a 538J de energía de descarga), siendo los efectos que causa el  $\text{CO}_2$  en este sentido muy similares a los que produce el Ar. El mejor comportamiento del  $\text{CO}_2$  con respecto al Ar en la desactivación de los radicales metilo vibracionalmente excitados no es suficiente como para mejorar notablemente el efecto sobre la aparición de productos desactivadores del iodo excitado, del mismo modo que ocurría cuando el  $\text{SF}_6$  estaba presente en la mezcla en pequeñas proporciones.

#### 5.1.4.3.2. Efecto de la energía de descarga

Al igual que en el apartado anterior vamos a discutir en primer lugar los resultados obtenidos sin filtrar la radiación de bombeo. Los resultados experimentales (apartado 4.2.2, tablas IV-XIII) nos indican que en todos los casos, tanto en presencia como en ausencia de gas diluyente, la duración de la emisión láser disminuye al aumentar la energía de descarga (la única anomalía aparece cuando el gas diluyente es  $\text{CO}_2$  en

la proporción 1:3, caso en que aumenta la duración de la señal al pasar de 538 a 829J de energía de descarga). La razón de este efecto es clara: al aumentar la energía de descarga también aumenta la descomposición del sustrato y los productos desactivadores que hacen terminar la emisión láser aparecen a tiempos más cortos en niveles suficientes como para extinguir la oscilación. En las tablas XXVI y XXVII se aprecia claramente el incremento en la descomposición y en la producción de metano originado en la reacción (5.2). Por el contrario, la producción de  $C_2H_4$ , que también debería aumentar de acuerdo con la reacción (5.4), disminuye. Esto se debe a que el  $C_2H_4$  se fotoliza a su vez originando acetileno [233]. El incremento en la cantidad presente de productos desactivadores viene asimismo indicado claramente por el hecho de que al aumentar la energía de descarga disminuye el número de emisiones láser consecutivas obtenidas (apartado 4.2.2.4), consecuencia de la acumulación de productos desactivadores a lo largo de descargas sucesivas.

Conviene tener en cuenta que al aumentar la energía de descarga se produce asimismo un desplazamiento de la longitud de onda correspondiente al máximo de emisión del cuerpo negro equivalente a la lámpara de destello (apartados 3.5.3 y 3.5.5) hacia las longitudes de onda cortas, con lo que se favorece la acción de estas que son, como hemos visto en 5.1.1, especialmente eficaces en la producción de radicales metilo excitados vibracionalmente. Es cierto que, tal como vimos en el apartado 5.1.4.2.3, al aumentar la energía de descarga también se adelanta el comienzo de la emisión láser. No obstante, el efecto del aumento de la descomposición del sustrato adelantando el final de la emisión es mucho más importante que el efecto del incremento de la velocidad de bombeo adelan

tando el comienzo de la señal. Algo más adelante, en el apartado 5.1.4.4.2, vemos que los resultados de la medida de la ganancia a 1197 J de energía de descarga confirman la importancia de este incremento en la producción de productos desactivadores al aumentar la energía de descarga.

A la vista de lo dicho arriba puede resultar un tanto sorprendente el que cuando se filtra la radiación de bombeo la duración de la emisión láser aumenta cuando se incrementa la energía de descarga (apartado 4.3.2.2.1, tablas XX, XXI, XXII). Este resultado se comprende fácilmente, no obstante, si se tiene en cuenta que en presencia del filtro disminuye la descomposición del medio activo y la cantidad de productos desactivadores formados (apartados 5.1.1 y 5.1.4.4.2; tablas XXVI y XXVII), cuyo tiempo de aparición también se retarda. Como el aumento de la energía de descarga tiene al mismo tiempo el efecto de adelantar el comienzo de la emisión láser, el efecto global es el de un incremento en la duración de la emisión al no haber presentes en el medio sustancias desactivadoras en cantidad suficiente y a tiempos lo bastante cortos como para adelantar el final de la emisión láser en forma sustancial. Es más, en el caso en que el gas diluyente es  $\text{SF}_6$  no solamente termina la señal algo más tarde a 1197 J que a 538 J de energía de descarga, sino que aparecen dos señales láser en el mismo destello, cada una en un máximo del mismo (figura 59 de apartado 4.3.2.2). La aparición de esta segunda señal láser es una consecuencia del efecto combinado del filtro sobre los radicales metilo calientes, disminuyendo la descomposición y la cantidad de productos formados durante la fotólisis, y del aumento de la energía de descarga incrementando la inversión de población. Ambos efectos, junto con la acción del  $\text{SF}_6$  sobre la recombinación (5.19), permiten

que el bombeo correspondiente al segundo pico del destello sea suficiente para superar nuevamente el umbral de inversión de población con la consiguiente emisión láser. La necesidad del efecto suplementario del  $\text{SF}_6$  incrementando la desaparición de iodo fundamental y favoreciendo, por tanto, el mantenimiento de un valor más alto de la inversión de población, queda claramente de manifiesto en el hecho de que cuando el gas diluyente es Ar no se obtiene la segunda emisión láser correspondiente al segundo máximo del destello. Este hecho aporta una nueva evidencia a favor de la interpretación discutida en el apartado 5.1.4.3.1, que nos indicaba que si bien el Ar en presencia de filtro era algo más efectivo que el  $\text{SF}_6$  en su actuación a tiempos cortos, a tiempos largos se dejaba sentir la mayor efectividad del  $\text{SF}_6$  sobre la recombinación. Como veremos en el apartado 5.2.2.4, nuestro modelo cinético predice claramente que en presencia de filtro y a 1197 J de energía de descarga la presencia de  $\text{SF}_6$  mantiene el valor de la inversión de población distinto de cero (si bien por debajo del umbral) después de la terminación de la primera emisión láser hasta que el incremento del bombeo correspondiente al segundo máximo del destello aumenta nuevamente dicha inversión de población por encima del umbral, mientras que cuando el gas diluyente es Ar la inversión de población baja a cero una vez que ha terminado la primera emisión láser.

#### 5.1.4.4. Ganancia

##### 5.1.4.4.1. Efecto de la adición de gases inertes

El efecto sobre la ganancia de la adición de gases inertes al medio activo ya se discutió en otro contexto, apartados 5.1.3 y 5.1.4.2.2.

Los resultados experimentales obtenidos a 538 J de energía de descarga (apartado 4.4.2.2, tabla XXIV) nos indican que la adición de gases inertes tiene muy poco efecto, cuando tiene alguno, sobre el valor de la ganancia, tanto cuando se filtra como cuando no se filtra la radiación de bombeo. Este hecho se explica, tal como se discutió en el apartado 5.1.3, por la combinación de los dos importantes efectos ejercidos por los gases diluyentes: disminución del valor de la sección eficaz de emisión estimulada por ensanchamiento colisional y efecto moderador del gas diluyente que permite el crecimiento de una inversión de población más alta. En el apartado 5.1.4.2.2 se discutió el significado de esta igualdad de la ganancia en presencia de los diversos gases diluyentes.

#### 5.1.4.4.2. Efecto de la energía de descarga

Los resultados de la medida de la ganancia a 538J y 1197J de energía de descarga, tanto filtrando como sin filtrar la radiación de bombeo (apartado 4.4.2.2, tablas XXIV, XXV) nos van a proporcionar una nueva prueba a favor de la interpretación efectuada en el apartado 5.1.4.3.2 así como a favor del mecanismo discutido en el apartado 5.1.1.3.

El análisis efectuado en 5.1.1 permitía concluir que la presencia de un filtro eliminando las longitudes de onda de la radiación de bombeo por debajo de 220 nm evita la formación de radicales metilo vibracionalmente excitados, lo que tiene como consecuencia el disminuir notablemente la descomposición del  $\text{CH}_3\text{I}$  y la aparición de iodo molecular, que es uno de los principales productos desactivadores del iodo excitado. Cuando no se filtra la radiación de bombeo el  $\text{SF}_6$  actúa, como vimos en el apartado 5.1.1.3, termalizando los radicales metilo calien-



tes, si bien esta actuación es incompleta y un aumento de la energía de descarga incrementa la presencia en el medio de radicales calientes que no son termalizados por el  $\text{SF}_6$ , lo que conlleva un aumento de la descomposición (tablas XXVI y XXVII) y un incremento en la cantidad presente de productos desactivadores (apartado 5.1.4.3.2). Si esto es así, este incremento de la cantidad de productos desactivadores, con su consiguiente efecto sobre la inversión de población, al aumentar la energía de descarga cuando no se filtra la radiación de bombeo debería afectar al valor de la ganancia, puesto que debería compensar, al menos en parte, el aumento del valor del máximo de inversión de población debido al incremento de la energía de descarga. Efectivamente, la medida de la ganancia para una mezcla de  $\text{CH}_3\text{I}$  con  $\text{SF}_6$  en la proporción 1:9 a 1197 J de energía de descarga y sin filtrar la radiación de bombeo proporciona el resultado de que la ganancia no solamente no aumenta con respecto al caso en que la energía de descarga es de 538 J sino que, en todo caso, muestra tendencia a disminuir. Por el contrario, cuando en las mismas condiciones se mide la ganancia filtrando la radiación de bombeo se obtiene que la ganancia es claramente mayor a 1197 J que a 538 J de energía de descarga, lo que es una clara confirmación de la actuación del filtro en el sentido de disminuir la presencia de productos desactivadores del iodo excitado.

En este contexto resulta especialmente interesante un hecho ya remarcado en el apartado 4.4.2.2 y cuya explicación está implícita en lo dicho arriba: la inversión que se aprecia en la relación entre los valores de la ganancia correspondientes a filtrar o no filtrar la radiación de bombeo al pasar de bajas a altas energías de descarga de modo que mientras que a 538 J de energía de descarga la ganancia es me-

nor cuando se filtra la radiación de bombeo que cuando no se filtra, ocurre lo contrario al aumentar la energía de descarga a 1197 J. La razón de este hecho estriba en que, mientras que cuando no se filtra la radiación de bombeo la ganancia no aumenta al aumentar la energía de descarga sino que, en todo caso, tiende a disminuir por las razones expuestas arriba, cuando se filtra la radiación de bombeo la ganancia sí que experimenta un incremento en su valor al aumentar la energía de descarga, tal como se explico anteriormente. De este modo, la ganancia correspondiente al caso en que se filtra la radiación de bombeo termina por alcanzar, e incluso superar, el correspondiente valor de la ganancia sin filtro.

#### 5.1.5. Velocidad de bombeo y operación láser

La discusión sostenida a lo largo de los apartados precedentes arroja nueva luz sobre los resultados reseñados en la sección 4.1 y confirma el análisis preliminar entonces efectuado. Tal como discutíamos en el apartado 4.1.2, los resultados obtenidos parecían indicar que aunque el efecto desactivador del propio sustrato era importante también era importante el efecto de otros productos desactivadores formados durante la fotólisis, hasta el punto de que estos últimos podían impedir la oscilación láser si se utilizaban pulsos de destello anchos. El análisis efectuado a lo largo de los apartados anteriores ha confirmado, en efecto, la importancia de la presencia de los productos desactivadores cuando no se filtra la radiación de bombeo. Aparece entonces un efecto dinámico: por un lado la velocidad de bombeo y por otro, compitiendo con ella, la velocidad de desactivación. Cuando la velocidad de bombeo es lo bastante lenta como para permitir que las sustancias desac

tivadoras se acumulen en cierta cantidad antes de que el bombeo tenga tiempo de alcanzar un determinado valor umbral, el efecto de los productos desactivadores se convierte en dominante y el bombeo es insuficiente para compensar dicho efecto y permitir a la inversión de población alcanzar el valor umbral necesario para que se inicie la oscilación láser. Otra manifestación de este mismo efecto de los productos desactivadores impidiendo oscilación láser cuando se acumulan por encima de una cierta cantidad aparece, por ejemplo, en los experimentos de operación repetitiva láser cuando se utilizan mezclas de  $\text{CH}_3\text{I}$  y  $\text{SF}_6$  en proporciones 1:3 o 1:9 y no se filtra la radiación de bombeo (apartado 4.2.2.4, tablas XIV-XVIII). En este caso los productos desactivadores se van acumulando a lo largo de las descargas sucesivas hasta que al cabo de unos pocos disparos están presentes en cantidad suficiente como para impedir ulteriores oscilaciones láser. Vemos, efectivamente, en los resultados presentados en las tablas XIV-XVIII, que la intensidad del destello a la que comienza la emisión láser va siendo cada vez mayor en las emisiones consecutivas y que la intensidad del destello a que aparece la última emisión láser es la misma, independientemente de la energía de descarga utilizada, cuando la mezcla  $\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$  está hecha en la proporción 1:9, y muy similar cuando la mezcla es en proporción 1:3. Una ulterior acumulación de productos desactivadores convierte el efecto de los mismos en dominante sobre el bombeo e impide la oscilación láser, tal como se indicó anteriormente.

En el apartado 4.1.2 habíamos visto que los resultados experimentales indicaban la existencia de un "umbral de intensidad del destello", por debajo del cuál la acción láser no podía ocurrir, y habíamos

dado una explicación que envolvía un crecimiento de los productos desactivadores formados en la fotólisis o bien exponencial o bien con algún periodo de inducción. Una formación lineal de dichos productos desactivadores originaría un incremento continuo en la intensidad del destello a la que aparece la emisión láser dependiendo de la pendiente del pulso de destello, lo que es contrario a las observaciones. En los experimentos realizados sin filtrar la radiación de bombeo (apartado 4.2.2, tablas IV-XIII) se aprecia claramente el mismo efecto dentro de cada caso correspondiente a una determinada combinación de  $\text{CH}_3\text{I}$  con gas diluyente, de modo que la intensidad del destello en el umbral del láser es la misma, o muy similar, independientemente de la energía de descarga utilizada. Este hecho nos indica nuevamente que si bien el aumento de la energía de descarga origina un incremento de la presencia de productos desactivadores, (apartado 5.1.4.3.2), este efecto no es lineal, sino que es necesario que transcurra un cierto tiempo antes de que la presencia de dichos productos alcance niveles suficientes como para dejar sentir su efecto. Por esta razón, tal como vimos en el apartado 5.1.4.3.2, el efecto del incremento de la energía de descarga en cuanto a la presencia de productos desactivadores se deja sentir únicamente en el final de la emisión láser. Si los productos desactivadores se incrementasen linealmente en vez de tener un cierto período de inducción en su formación debería, en primer lugar, aumentar con la energía de descarga la intensidad del destello a la que aparece la emisión láser. En segundo lugar, como la presencia en aumento de productos desactivadores compensaría el incremento del bombeo, no debería adelantarse el comienzo de la emisión láser al aumentar la energía de descarga. Ambos hechos son contrarios a las observaciones experimentales. Los dos resultados señalados (adelanto en el comien-

zo de la emisión láser y no variación en la intensidad del destello a la que aparece la emisión cuando se aumenta la energía de descarga) nos indican, por tanto, que la formación de productos desactivadores como el iodo molecular es un proceso que requiere un cierto tiempo de inducción (hecho que se aprecia claramente en las figuras 74-75 del apartado 5.2.2.1). Esto es consistente con el esquema según el cuál aparece  $I_2$  en el medio láser. Los principales procesos a través de los cuáles aparece el  $I_2$  son los reflejados por las reacciones (5.4) y (5.21). Ambos procesos aumentan en importancia en el tiempo puesto que dependen, respectivamente, de la presencia de radicales  $CH_2I$  y del iodo atómico en estado fundamental. En particular, el proceso (5.21) requiere la presencia de un tercer cuerpo, siendo el tercer cuerpo más eficiente para promover dicha reacción el propio  $I_2$ , de modo que según se va acumulando  $I_2$  en el medio dicho proceso aumenta más y más en importancia.

Naturalmente, la intensidad del destello en el umbral del láser se modificará si se cambia o se elimina el gas diluyente, o si se modifica la proporción del mismo en la mezcla, por cuanto que la presencia de un gas diluyente tiene el efecto de, por un lado, aumentar el valor de la inversión de población umbral a la que comienza la oscilación láser (apartado 5.1.4.2.1) y, por otro, aumentar la velocidad con que varía la inversión de población (apartado 5.1.4.2.3).

#### 5.1.6. Desactivación por iodo molecular

Como hemos indicado a lo largo de los apartados anteriores, el iodo molecular es el más importante y eficaz de los productos desactiva

dores formados durante la fotólisis y hemos adscrito, por tanto, el efecto limitante de la operación láser repetitiva a la rápida desactivación del iodo atómico electrónicamente excitado por parte del iodo molecular, lo que es enmascarado en los experimentos en que no se filtra la radiación de bombeo por la descomposición y la desactivación secundaria. La cuestión que permanece todavía es porqué este  $I_2$  no parece afectar a la operación láser con  $CH_3I$  puro cuando se filtra la radiación de bombeo, caso en que se obtienen emisiones láser consecutivas hasta descomposiciones del orden del 55%, mientras que las mezclas con gases diluyentes son incapaces de operar incluso a energías de descarga mayores. De hecho, los intentos de obtener oscilación láser cuando se filtra la radiación de bombeo con gases diluyentes a energías de descarga de 1197 J fallan cuando la descomposición es de aproximadamente el 10%. La formación de  $I_2$  en los distintos casos no debe ser muy diferente: una lenta recombinación de iodo atómico (5.21) y una formación más rápida por medio de la reacción (5.4). Si, de acuerdo con este argumento, admitimos que la descomposición proporciona una indicación del  $I_2$  formado, estamos forzados a admitir que el uso de  $CH_3I$  puro a 538 J de energía de descarga, con una ganancia claramente inferior a la del caso  $CH_3I/SF_6$  1:9 a 1197 J de energía de descarga (apartado 4.4.2.2, tablas XXIV-XXV), es capaz de mantener oscilación láser a concentraciones de  $I_2$  aproximadamente cinco veces mayores que en este último caso, lo que es, obviamente, imposible. La respuesta a esta paradoja radica en que es errónea la suposición implícita en nuestro argumento de que todo el  $I_2$  formado permanece en fase gaseosa y puede actuar como desactivador. A fin de comprender esta afirmación conviene considerar la difusión del iodo molecular en el medio gaseoso. La dis

tribución de las moléculas de iodo en el tubo de fotólisis como una función del tiempo para una concentración inicial de iodo molecular  $[I_2]_0$ , desde  $x = -1$  a  $x = +1$ , viene dada por [103] :

$$[I_2](x,t) = \frac{1}{2} [I_2]_0 \left\{ \operatorname{erf} \left( \frac{1-x}{2\sqrt{Dt}} \right) + \operatorname{erf} \left( \frac{1+x}{2\sqrt{Dt}} \right) \right\} \quad (5.22)$$

donde  $\operatorname{erf}(z)$  es la función error y  $D$  el coeficiente de difusión del iodo molecular en la mezcla gaseosa.

El coeficiente  $D$  viene dado por la expresión [237-a] :

$$D = \frac{1}{3} \lambda \bar{u} \quad (5.23)$$

donde

$$\bar{u} = \left( \frac{8kT}{\pi m} \right)^{1/2} \quad (5.24)$$

( $k$  = constante de Boltzmann,  $T$  = temperatura absoluta;  $m$  = masa de la especie en cuestión) y  $\lambda$  es el recorrido libre medio. En una mezcla de  $N$  gases el recorrido libre medio de las moléculas de la especie  $A$  en el seno del resto de los gases viene dado por la expresión [237-b] :

$$\lambda_A = \frac{1}{\sum_{i=1}^{N-1} n_i \sigma_{iA}^2 \left( 1 + \frac{m_A}{m_i} \right)^{1/2}} \quad (5.25)$$

donde  $n_i$  es el número de moléculas por unidad de volumen de la especie  $i$ ;  $m_i$  es la masa de la especie  $i$ , y  $\sigma_{iA} = \frac{1}{2} (\sigma_i + \sigma_A)$ , donde  $\sigma_m$  es el diámetro de la molécula de la especie  $m$  (no consideramos la autodifusión por ser claramente dominante la presencia de  $CH_3I$  o de  $CH_3I + SF_6$  sobre el  $I_2$ ).

Utilizando (5.24) y (5.25) en (5.23) con  $m_{\text{SF}_6} = 146$ ,  $m_{\text{CH}_3\text{I}} = 142$ ,  $m_{\text{I}_2} = 254$  y los diámetros moleculares [235]:  $\sigma_{\text{SF}_6} = 5,51 \text{ \AA}$ ,  $\sigma_{\text{I}_2} = 4,98 \text{ \AA}$ ,  $\sigma_{\text{CH}_3\text{I}} = 5,8 \text{ \AA}$  (el diámetro del  $\text{CH}_3\text{I}$  se ha estimado a partir de los diámetros del  $\text{CH}_3$  y del  $\text{I}$  y de la distancia de enlace) se obtienen los coeficientes de difusión del  $\text{I}_2$ :

$$D(\text{I}_2/\text{CH}_3\text{I}) = 2,31 \text{ cm}^2/\text{s} ; \quad D(\text{I}_2/\text{CH}_3\text{I} + \text{SF}_6) = 0,24 \text{ cm}^2/\text{s} \quad (5.26)$$

de modo que el coeficiente de difusión es diez veces mayor cuando se usa  $\text{CH}_3\text{I}$  puro que cuando se usa una mezcla  $\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$  1:9.

Llevando estos valores a la ecuación (5.22) se obtienen las distribuciones de moléculas de yodo en el tubo de fotólisis a diferentes tiempos, normalizadas a una concentración inicial unidad de densidad uniforme desde  $x = -1$  hasta  $x = +1$ , que se muestra en la figura 72.

Estos calculos nos indican que cuando se utiliza  $\text{CH}_3\text{I}$  puro como sustrato el  $\text{I}_2$  tiene tiempo bastante entre destello y destello para emigrar hacia los extremos del tubo de fotólisis y permanecer aquí, en parte cubriendo las paredes fuera del rango del destello y en parte absorbido por la resina epóxica (Araldite) que cementa las ventanas al ángulo de Brewster que cierran a ambos lados el tubo láser (es un hecho bien conocido por todos aquellos que han trabajado con  $\text{I}_2$  en fase gaseosa la fuerte e irreversible absorción del mismo por parte de las resinas epóxicas). Por otro lado, el transporte de  $\text{I}_2$  en presencia de  $\text{SF}_6$  (o  $\text{Ar}$ ) es más lento, de modo que el  $\text{I}_2$  puede ejercer su poderoso efecto desactivador en los destellos consecutivos. Este argumento se ve corroborado por



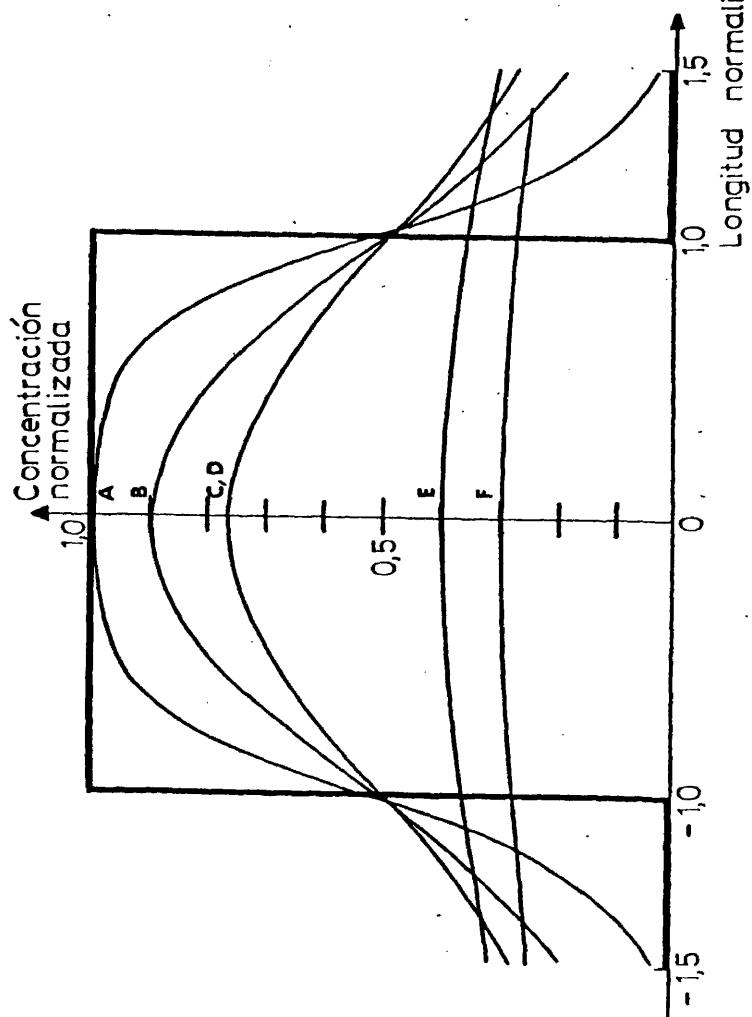


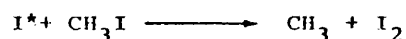
Figura 72.- Distribuciones longitudinales de  $I_2$  en la célula láser durante la fotólisis a diferentes tiempos. La concentración inicial a  $t=0$  para una célula láser de longitud normalizada de  $-1$  a  $+1$  viene dada por la línea gruesa. Las curvas A,B,C son la distribución de  $I_2$  en  $CH_3I/SF_6$  1:9 a 60, 300 y 600 segundos, respectivamente. Las curvas D,E,F son la distribución de  $I_2$  en  $CH_3I$  puro a 60, 300 y 600 segundos, respectivamente. El mínimo intervalo de tiempo transcurrido entre disparos en experimentos reales (operación repetitiva) es de  $t \geq 300$  s.

inspección visual de la célula láser. Con  $\text{CH}_3\text{I}$  puro a 538 J de energía de descarga dos destellos son suficientes para hacer visible de manera clara la presencia de  $\text{I}_2$  los extremos de la célula láser. Después de 23 emisiones láser la pared en los extremos de la célula, fuera del rango del destello, presenta un color rojizo y aparece opaca y la resina epóxica está completamente negra. Cuando hay  $\text{SF}_6$  presente después de dos emisiones láser a 1197 J de energía de descarga no hay  $\text{I}_2$  visible en los extremos de la célula y el color de la resina epóxica permanece invariable. Por tanto, en estas condiciones la difusión de  $\text{I}_2$  hacia los extremos de la célula láser no es lo bastante rápida y el yodo molecular es forzado a permanecer en fase gaseosa.

## 5.2. INTERPRETACION CUANTITATIVA DE LOS RESULTADOS. MODELO CINETICO PARA EL LASER DE FOTODISOCIACION DE IODO CON $\text{CH}_3\text{I}$ COMO MEDIO ACTIVO

En esta sección vamos a utilizar los argumentos presentados en la sección precedente para desarrollar un modelo cinético del láser de yodo con  $\text{CH}_3\text{I}$  como medio activo. Como veremos, este modelo predice satisfactoriamente el comportamiento del láser.

En el apartado 2.2.3 ya hemos hablado acerca de los diversos intentos de construir modelos cinéticos para el láser de yodo que suministren información acerca de la operación láser. Se han propuesto en los mismos diversas interpretaciones acerca de los mecanismos más relevantes en la operación láser. Por ejemplo, en un modelo cinético [62] se ha propuesto una interpretación de la formación de  $\text{I}_2$  en la fotólisis de destello del  $\text{CH}_3\text{I}$  que implica una fuerte participación de la reacción:



Otros modelos propuestos para láseres con medios activos de  $CH_3I$  y  $CF_3I$  [60], [63] hacen hincapié en el papel de la desactivación del  $I^*$  por los radicales formados inicialmente. Como ya hemos indicado en el apartado 2.2.3, los altos rendimientos de descomposición encontrados bajo ciertas condiciones han sido adscritos por algunos autores a la pirólisis del sustrato [52], [146], siendo explicado el rápido equilibrio térmico implicado por este mecanismo por transferencia de energía vibracional desde los radicales calientes al sustrato. No obstante, nuestros resultados acerca de los efectos de la longitud de onda de la radiación de bombeo y de la operación láser repetitiva introducen nuevas evidencias que los modelos reseñados no pueden explicar. En particular, como ya discutimos en el apartado 5.1.1.1, la hipótesis de la pirólisis parece ser demasiado cruda y es necesario tener en cuenta la cantidad y el tipo de la energía depositada inicialmente sobre los fotofragmentos. En consecuencia, hemos introducido explícitamente en nuestro modelo cinético de la operación láser las diferentes reactividades de los radicales metilo según estén excitados traslacional o vibracionalmente. Hemos hecho, asimismo, el máximo uso del cuerpo de datos sobre reacciones elementales disponible en la literatura a fin de mantener el número de parámetros escogidos arbitrariamente en un mínimo absoluto. Bajo estas condiciones hemos tratado de desarrollar un modelo que aproxime, al menos, el comportamiento temporal del láser, los productos resultantes después de la operación láser y la ganancia del medio bajo diferentes condiciones de iluminación y presiones de gases diluyentes. Como veremos, nuestro modelo no es solamente capaz de racionalizar nuestros

resultados previos, sino que también suministra información acerca de algunos importantes parámetros del láser: la sección eficaz de emisión estimulada calculada con el modelo está en buen acuerdo con los datos experimentales disponibles al respecto.

#### 5.2.1. El modelo

##### 5.2.1.1. Descripción del mecanismo cinético implicado en nuestro modelo

A fin de construir y probar nuestro modelo hemos hecho un uso extenso de los datos experimentales reseñados en el capítulo 4 y de los indicados en las tablas XXVI y XXVII de la sección 5.1. Hemos usado, por tanto, las condiciones del trabajo experimental reseñadas en el capítulo 4: A, yoduro de metilo con fotólisis a longitudes de onda  $\lambda > 220$  nm; B, el mismo caso pero con todo el arco de la lámpara de xenon ( $\lambda > 165$  nm); C, yoduro de metilo diluido en  $\text{SF}_6$  en la proporción 1:9 a  $\lambda > 220$  nm; D, el mismo caso que C pero con todo el arco de xenon; E, yoduro de metilo diluido en Ar en la proporción 1:9 a  $\lambda > 220$  nm; F, mismo caso que E pero con  $\lambda > 165$  nm. No hemos utilizado en la comprobación del modelo los resultados correspondientes al caso en que el gas diluyente es  $\text{CO}_2$  por no disponer, en este caso, de resultados de análisis de productos de fotólisis. Es necesario tener en cuenta que algunos de los parámetros láser observados son muy sensibles a las condiciones experimentales: limpieza de las ventanas y espejos, alineamiento, etc., y, por tanto, no se debe esperar un acuerdo exacto entre el cálculo y el experimento. Más adelante tocaremos de nuevo este punto.

La hipótesis básica sobre la que hemos desarrollado nuestro modelo es la de la generación de radicales con diferentes tipos , y cantidades de energía según sea la longitud de onda de fotólisis utilizada. Tal como hemos discutido en la sección 5.1 esta hipótesis se sustenta en los datos experimentales disponibles acerca de la fotólisis del  $\text{CH}_3\text{I}$ . En consecuencia, admitimos que a longitudes de onda más largas que 220 nm la fotólisis del  $\text{CH}_3\text{I}$  forma, principalmente, radicales metilo de baja energía traslacionalmente excitados; por el contrario, por debajo de 220 nm predomina la formación de radicales metilo altamente energéticos excitados vibracionalmente. Los radicales diferentemente activados presentan también diferentes reactividades químicas. El radical vibracionalmente excitado es más reactivo, abstrayendo hidrógeno (reacción (5.2) de 5.1.1.1) muy fácilmente (la energía de activación de dicha reacción es  $E_a \approx 0,39$  eV), mientras que la principal reacción de los radicales traslacionalmente excitados es la recombinación con otros radicales. Se pueden encontrar evidencias a favor de estas ideas tanto en nuestros datos experimentales como en datos provenientes de experimentos completamente distintos: la fotólisis estacionaria del  $\text{CH}_3\text{I}$  [114] y espectroscopía de fotofragmentación [115] (ver apartado 5.1.1.1). Siguiendo esta línea de argumentación hemos desarrollado, en primer lugar, un modelo para el caso más simple, en el que solamente se forman radicales metilo traslacionalmente excitados (o sea, para el caso en que la fotólisis se realiza a  $\lambda > 220$  nm). Una vez que este modelo funcionó satisfactoriamente lo extendimos para que diera también cuenta de los experimentos realizados con todo el arco de la lámpara de destello de xenon.

5.2.1.1.1. Fotólisis a longitud de onda mayor que 220 nm

El mecanismo de reacción se puede racionalizar por medio de las reacciones 1-19 de la tabla XXVIII. En todo lo que sigue, los números de las reacciones serán los usados en dicha tabla. La tabla también incluye las constantes de velocidad de las distintas reacciones usadas en los cálculos y las referencias pertinentes.

El proceso se inicia por medio de la fotólisis de destello del  $\text{CH}_3\text{I}$ , que para  $\lambda > 220 \text{ nm}$  produce radicales metilo excitados traslacionalmente,  $(\text{CH}_3)_t^*$ , y yodo atómico ( $\sim 92\%$  del mismo excitado, apartado 2.2.1), tal como se indica en la reacción 1. El yodo excitado puede contribuir a la emisión láser, reacción 2, o ser desactivado por colisiones con el propio medio activo, reacciones 3 y 4, y otros productos, reacciones 5-99. La desactivación del  $\text{I}^*$  por medio de las reacciones 3-6 ha sido estudiada extensamente [72], [131], [130], [128], [118], [125], [36], [120], [121], [48], [124] por lo que se pueden introducir en nuestro modelo buenas constantes de velocidad para las mismas.

Donohue y Wiesenfeld [72] han encontrado que el efecto combinado de las reacciones 7 y 8 sobre la emisión láser es de cinco a diez veces el del yoduro de alquilo y estimaron que  $k_7 + k_8 \approx 5 \times 10^{-12} \text{ cm}^3 \text{ molécula}^{-1} \text{ s}^{-1}$ . Palmer y Padrick [63] obtuvieron un valor similar para  $k_7$ . Desde luego, la presencia de gases inertes influirá en  $k_8$  y la reacción equivalente en que interviene el yodo en estado fundamental. Volveremos más tarde sobre este punto.

TABLA XXVIII

Procesos físicos y químicos incluidos en nuestro modelo para el laser de iodo con  $\text{CH}_3\text{I}$  como medio activo. Los procesos 1-19 se usan para longitudes de onda de fotólisis mayores que 220 nm. Cuando se permiten longitudes de onda más cortas se incluyen los procesos 20-24

Número	Proceso	constante de	Referencia
		velocidad (k) $\text{cm}^3 \text{molécula}^{-1} \text{s}^{-1}$	
1	$\text{CH}_3\text{I} \xrightarrow{h\nu} (\text{CH}_3)_t + \text{I}^*(\text{I}), \lambda > 220\text{nm}$		
2	$\text{I}^* \longrightarrow \text{I} + h\nu', \lambda' = 1315\text{nm}$		
3	$\text{I}^* + \text{CH}_3\text{I} \longrightarrow \text{I}_2 + \text{CH}_3^{\bullet}$	$1,33 \times 10^{-13}$	[72] , [131]
4	$\text{I}^* + \text{CH}_3\text{I} \longrightarrow \text{I} + \text{CH}_3\text{I}$	$4,3 \times 10^{-13}$	[72] , [131]
5	$\text{I}^* + \text{I}_2 \longrightarrow \text{I} + \text{I}_2$	$3,6 \times 10^{-11}$	[128] , [130]
6 <sup>b</sup>	$\text{I}^* (+\text{M}) \longrightarrow \text{I} (+\text{M})$	$3,1 \times 10^{-15}$	[118] , [125]
6 <sup>c</sup>		$2,0 \times 10^{-18}$	[121] [36] [48] [120] [124]
7	$\text{I}^* + \text{CH}_3^{\bullet} \longrightarrow \text{I} + \text{CH}_3^{\bullet}$	$1,6 \times 10^{-12}$	[63] [72]
8 <sup>a</sup>	$\text{I}^* + \text{CH}_3^{\bullet} (+\text{M}) \longrightarrow \text{CH}_3\text{I} (+\text{M})$	$1,6 \times 10^{-12}$	[63] , [72]
8 <sup>b</sup>		$2,5 \times 10^{-11}$	d
8 <sup>c</sup>		$3,2 \times 10^{-12}$	d
9	$\text{I}^* + (\text{CH}_3)_t \longrightarrow \text{I} + \text{CH}_3^{\bullet}$	$3,0 \times 10^{-12}$	[63] , [72]
10	$(\text{CH}_3)_t + \text{CH}_3\text{I} \longrightarrow \text{CH}_4 + \text{CH}_2\text{I}^{\bullet}$	$5,0 \times 10^{-14}$	d
11	$(\text{CH}_3)_t + \text{CH}_3\text{I} \longrightarrow \text{CH}_3^{\bullet} + \text{CH}_3\text{I}$	$1,16 \times 10^{-12}$	d
12 <sup>b</sup>	$(\text{CH}_3)_t (+\text{M}) \longrightarrow \text{CH}_3^{\bullet} (+\text{M})$	$1,16 \times 10^{-12}$	d
12 <sup>c</sup>		$2,0 \times 10^{-12}$	d
13	$\text{I} + \text{I} + \text{CH}_3\text{I} \longrightarrow \text{I}_2 + \text{CH}_3\text{I}$	$3,1 \times 10^{-31} \text{ e}$	[238]
14	$\text{I} + \text{I} + \text{I}_2 \longrightarrow 2\text{I}_2$	$2,52 \times 10^{-30} \text{ e}$	[239]

TABLA XXVIII (continuación)

Número	Proceso	constante de velocidad (k) cm <sup>3</sup> molécula <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup>	Referencia
15 <sup>b</sup>	I+I (+M) → I <sub>2</sub> (+M)	4,1x10 <sup>-33</sup> e	[240]
15 <sup>c</sup>		4,1x10 <sup>-33</sup> e	[240]
16	CH <sub>3</sub> <sup>•</sup> +CH <sub>3</sub> <sup>•</sup> → C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	3,66x10 <sup>-11</sup>	[142]
17	CH <sub>3</sub> <sup>•</sup> +I <sub>2</sub> → CH <sub>3</sub> I+I	8,3x10 <sup>-12</sup>	[241]
18 <sup>a</sup>	CH <sub>3</sub> <sup>•</sup> +I (+M) → CH <sub>3</sub> I (+M)	8,3x10 <sup>-12</sup>	d
18 <sup>b</sup>		1,5x10 <sup>-10</sup>	d
18 <sup>c</sup>		2,0x10 <sup>-11</sup>	d
19	<sup>•</sup> CH <sub>2</sub> I+ <sup>•</sup> CH <sub>2</sub> I → C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> +I <sub>2</sub>	7,3x10 <sup>-12</sup>	d
20	CH <sub>3</sub> I $\xrightarrow{h\nu}$ (CH <sub>3</sub> ) <sub>v</sub> <sup>•</sup> + I <sup>*</sup> (I), λ < 220 nm		
21	(CH <sub>3</sub> ) <sub>v</sub> <sup>•</sup> + CH <sub>3</sub> I → CH <sub>4</sub> + + <sup>•</sup> CH <sub>2</sub> I	2,5 x 10 <sup>-12</sup>	[242] , d
22	(CH <sub>3</sub> ) <sub>v</sub> <sup>•</sup> + CH <sub>3</sub> I → CH <sub>3</sub> <sup>•</sup> + + CH <sub>3</sub> I	2,5 x 10 <sup>-12</sup>	[242] , d
23 <sup>b</sup>	(CH <sub>3</sub> ) <sub>v</sub> <sup>•</sup> (+M) → CH <sub>3</sub> <sup>•</sup> (+M)	1,5 x 10 <sup>-11</sup>	[242]
23 <sup>c</sup>		4,15 x 10 <sup>-12</sup>	[242]
24	I <sup>*</sup> + (CH <sub>3</sub> ) <sub>v</sub> <sup>•</sup> → I + CH <sub>3</sub> <sup>•</sup>	3,0 x 10 <sup>-12</sup>	d

a) CH<sub>3</sub>I puro (o sea, M = CH<sub>3</sub>I); b) reacción con M=SF<sub>6</sub> (experimentos con CH<sub>3</sub>I/SF<sub>6</sub> proporción 1:9); c) misma reacción pero M=Ar (experimentos con CH<sub>3</sub>I/Ar en proporción 1:9); d) estimado en este trabajo, ver texto; e) unidades: cm<sup>6</sup> molécula<sup>-2</sup> s<sup>-2</sup>.

(CH<sub>3</sub>)<sub>t</sub><sup>•</sup> = radicales metilo excitados traslacionalmente.

(CH<sub>3</sub>)<sub>v</sub><sup>•</sup> = radicales metilo excitados vibracionalmente

CH<sub>3</sub><sup>•</sup> = radicales metilo termalizados.



La desactivación del  $I^*$  por radicales activados, reacción 9, puede jugar un papel importante cuando la presión del sustrato es baja y no hay presente gas diluyente. Se ha supuesto que la constante de velocidad para este proceso es ligeramente mayor que la de la reacción análoga con metilo termalizado. En la práctica, y para cálculos sin gases inertes, el efecto simultáneo de las reacciones 7-9 se ha hecho aproximadamente igual al reseñado en el trabajo de Donohue y Wiesenfeld mencionado arriba.

Las constantes de velocidad del radical metilo excitado traslacionalmente, reacciones 10-12, se han deducido de los resultados experimentales reseñados en la tabla XXVI (sección 5.1). La formación de aproximadamente un 2% de metano con respecto al  $CH_3I$  descompuesto (resultados con  $CH_3I$  puro a 538 J de energía de descarga) nos permite estimar que la constante de velocidad para la reacción 10 tiene un valor mayor que  $1/50$  de la correspondiente a la desactivación colisional (con  $CH_3I$ ) del radical, reacción 11. Si los únicos caminos de desaparición de los radicales  $(CH_3)_t$  fuesen los representados por las reacciones 10 y 11, el valor de  $k_{10}$  sería aproximadamente  $1/50$  de  $k_{11}$ . Como  $(CH_3)_t$  también puede desaparecer a través de 9, a fin de que se forme la cantidad de metano reseñada el valor de  $k_{10}$  debe ser mayor. La constante de velocidad de las desactivaciones colisionales 11 y 12 (ésta cuando hay gas inerte presente) se puede estimar como  $Z/N$ , donde  $Z$  es la velocidad de colisiones y  $N$  el número de colisiones requeridas para disminuir la energía del radical por debajo de 1 Kcal/mol, usando para la fracción de energía perdida por colisión la expresión  $\Delta E/E = 2m_1m_2/(m_1 + m_2)^2$ , donde  $m_1$  y  $m_2$  son las masas de las especies involucradas [201-b] .

El modelo se completa con las reacciones de recombinación y la reacción de  $I_2$  con el metilo termalizado, reacciones 13-19. Para las reacciones 13-17 existen datos disponibles en la literatura [238], [239], [240], [142], [241]. La constante de velocidad de la reacción 19 se ha estimado como constante colisional en la aproximación de las esferas duras [243]. La reacción 18 merece una discusión algo más detallada. Los datos disponibles para la constante de velocidad de esta recombinación iodo-radical metilo difieren en dos órdenes de magnitud [72], [63], [139]. Esta incertidumbre junto con el papel crucial que juega esta reacción en la fotodescomposición nos ha forzado a pensar cuidadosamente acerca de este proceso. En otros ioduros de alquilo se ha encontrado que esta constante de velocidad tiene magnitud similar a la de la recombinación de los radicales de alquilo [103], si bien se ha encontrado asimismo que en  $CF_3I$  tiene una fuerte dependencia con la presión [244]. Algunos datos experimentales nos ayudarán a clarificar este punto. El rendimiento cuántico de fotodescomposición del  $CH_3I$  (se define el rendimiento cuántico  $\phi$  como el número de moléculas descompuestas dividido por el número de fotones absorbidos [201-d]) medido en nuestro laboratorio para la fotólisis de destello de 6 Torr de  $CH_3I$  a  $\lambda > 220$  nm bajo las mismas condiciones empleadas en los experimentos láser, arrojó el valor de 0,77 [233]. Esto indica que el 20-25% del  $CH_3I$  fotolizado se recombina originando nuevamente la sustancia original (la descomposición primaria, reacción 1, del  $CH_3I$  tiene rendimiento cuántico  $\phi_D = 1$  [245]). La presencia de  $SF_6$  en la proporción  $CH_3I/SF_6$  1:9 baja el rendimiento cuántico experimental a aproximadamente 0,25 [233], siendo este efecto adscrito a la actuación del  $SF_6$  sobre la recombinación (reacciones 8, 18). Estos datos suminis-

tran la razón recombinación a  $C_2H_6$  (reacción 16)/recombinación a  $CH_3I$  (reacciones 8 + 18). Como la constante de velocidad de la recombinación del metilo (reacción 16) es muy bien conocida, esto nos permite obtener una buena estimación de las otras recombinaciones ( $k_8 + k_{18}$ ). La razón  $k_8/k_{18}$ , por último, se puede deducir de los efectos de estas constantes de velocidad sobre la inversión de población y de aquí, las constantes de velocidad individuales.

#### 5.2.1.1.2. Fotólisis con todo el arco de xenon ( $\lambda > 165$ nm)

Al esquema de reacción ya descrito hemos añadido la fotólisis del  $CH_3I$  a  $\lambda < 220$  nm, reacción 20. Este proceso forma iodo excitado  $I^*$  e iodo en el estado fundamental y radicales metilo vibracionalmente excitados  $(CH_3)_v$ . Este radical puede abstraer hidrógeno, reacción 21, ser termalizado colisionalmente por el medio activo, reacción 22, o por algún gas inerte, reacción 23. Finalmente, hemos incluido la reacción análoga a la 9: la desactivación del  $I^*$  por  $(CH_3)_v$ .

Los valores de  $k_{21}$ - $k_{23}$  están basados en los valores de Callear y Van der Bergh para la última [242]. La razón encontrada de metano/etano (tabla XXVI de la sección 5.1) indica velocidades similares para la abstracción y la desactivación (o sea,  $k_{21} \approx k_{22}$ , ver también [113]) en  $CH_3I$  puro. El efecto del  $SF_6$  y del Ar sobre dicha razón experimental permite la estimación de  $k_{22}/k_{23}$ .

Para  $k_{24}$ , por último, se supuso el mismo valor que el de la constante de la reacción análoga  $k_9$ .

#### 5.2.1.2. Ecuación de velocidad de la densidad de fotones

Tal como vimos en el apartado 1.1.7, ecuación (1.50), los diferentes procesos que afectan a la densidad de fotones son: las emisiones espontánea y estimulada de los átomos de iodo excitado, la absorción por parte de los átomos de iodo en el estado fundamental y las pérdidas en la cavidad. El primero de estos procesos es solamente importante como inductor del comienzo de la oscilación láser. Se puede despreciar y tener en cuenta su función permitiendo la presencia a todos los tiempos de una pequeña densidad de fotones.

Las pérdidas de la cavidad,  $p$ , definidas como  $I_f/I_i = 1 - p$ , donde  $I_i$  es la intensidad de la radiación al comienzo de una oscilación y  $I_f$  la intensidad de la misma después de una oscilación completa (en ausencia de medio amplificador, sección 4.4, ecuaciones (4.7) y (4.17)), fueron estimadas como del 30% (apartado 4.4.2) para la radiación que recorre un ciclo completo dentro de la cavidad. Para el programa de integración numérica es conveniente definir las pérdidas como una constante de velocidad  $\beta$  de disminución de la densidad de fotones  $\phi$ :

$$-\frac{d\phi}{dt} = \beta\phi \quad (5.27)$$

Tendremos que establecer entonces la relación entre  $\beta$  y las pérdidas  $p$  medidas experimentalmente. Integrando la ecuación (5.27) sobre el tiempo que necesita la luz para completar un ciclo dentro de la cavidad:

$$-\ln \frac{\phi_f}{\phi_i} = \beta \times \frac{2L}{c} \quad (5.28)$$

donde  $\phi_i$  y  $\phi_f$  son las densidades de fotones en la cavidad óptica al iniciarse el ciclo y al terminar el mismo, respectivamente,  $L$  la longitud de la cavidad y  $c$  la velocidad de la luz. Suponiendo que existe proporcionalidad entre la densidad de fotones y la intensidad luminosa, podemos escribir (5.28) en la forma:

$$-\ln \frac{I_f}{I_i} = \beta \frac{2L}{c} \quad (5.29)$$

Reemplazando  $I_f/I_i$  por  $1 - p$  se tiene, finalmente:

$$\beta = \frac{-c}{2L} \ln (1 - p) \quad (5.30)$$

El valor de  $\beta$  calculado a partir de (5.30) para nuestra cavidad es de  $4.9 \mu s^{-1}$ .

Teniendo en cuenta la expresión (1.26) (apartado 1.1.4), las velocidades de las transiciones inducidas entre los niveles superior e inferior, que vienen dadas por las expresiones (1.48) del apartado 1.1.7, se escriben inmediatamente en términos de la sección eficaz de emisión estimulada. La definición de la sección eficaz que se ha de usar en la ecuación de la densidad de fotones en nuestro caso requiere, no obstante, alguna discusión, especialmente en conexión con los niveles hiperfinos involucrados en la transición.

Hemos visto en el apartado 2.2.2.4 que la relajación entre los niveles hiperfinos del estado superior  $^2P_{1/2}$  de la transición láser del yodo atómico es mucho más lenta que la relajación de los niveles hiperfinos del estado inferior  $^2P_{3/2}$ . No obstante, como vimos entonces, el tiempo de relajación de los niveles del estado superior es del orden de

de  $10^{-8}$  -  $10^{-7}$  segundos. Esto quiere decir que, como nosotros trabajamos en un régimen de microsegundos, la relajación entre los niveles del estado superior en nuestro caso (y, por ende, entre los niveles del estado inferior) se puede suponer completa, de modo que la población de los niveles hiperfinos está distribuida de acuerdo con las degeneraciones de los niveles. Así, los niveles superiores estarán poblados en la razón 7/12 a 5/12 para  $F' = 3$  y  $F' = 2$ , respectivamente (apartado 2.2.2.1).

En ausencia de campo magnético la transición  $F' = 3 \longrightarrow F = 4$  es la que tiene mayor ganancia de las seis transiciones permitidas (apartado 2.2.2.3) y a bajas presiones la oscilación tiende a ocurrir selectivamente en esta transición [98] , [112] . Teniendo en cuenta la geometría de muestras lámparas de destello (que minimiza el campo magnético creado por la descarga en el medio láser, apartado 3.2) y el rango de presiones utilizado en nuestros experimentos, podemos suponer que en nuestras condiciones experimentales la oscilación en la transición  $F' = 3 \longrightarrow F = 4$  suprime totalmente todas las demás posibles transiciones hiperfinas..

En estas condiciones, la aparición de fotones en el medio por emisión estimulada vendrá regida por la ecuación:

$$\frac{d\phi}{dt} = c \sigma_{3 \rightarrow 4} I_{(3)}^* \phi \quad (5.31)$$

donde  $\phi$  es la densidad de fotones,  $I_{(3)}^*$  el número, por unidad de volumen, de átomos de yodo excitado en el subnivel  $F'=3$ ,  $\sigma_{3 \rightarrow 4}$  la sección eficaz de emisión estimulada entre los subniveles  $F' = 3$  y  $F = 4$ , y  $c$ , como usualmente, la velocidad de la luz (para pasar de la densidad de energía  $\rho$ ,

que es lo que aparece en la ecuación (1.50) de 1.1.7, a densidad de fotón es  $\phi$ , hemos usado (1.16)). Para escribir (5.31) se han tenido en cuenta (1.48) y (1.26).

Suponiendo, como explicamos arriba, que existe equilibrio entre los subniveles  $F' = 3$  y  $F' = 2$  del nivel superior  $^2P_{1/2}$ , y que la diferencia de energía entre ellos es despreciable, la población del subnivel  $F' = 3$  se puede escribir:

$$I_{(3)}^* = I^* \frac{g_3^*}{g_3^* + g_2^*} \quad (5.32)$$

donde  $I^*$  es el número total de átomos de iodo electrónicamente excitados por unidad de volumen, y  $g_3^*$ ,  $g_2^*$  las degeneraciones de los subniveles  $F' = 3$  y  $F' = 2$ , respectivamente, del estado  $^2P_{1/2}$ .

Introduciendo (5.32) en (5.31) se obtiene:

$$\frac{d\phi}{dt} = c\sigma_{3 \rightarrow 4} \frac{g_3^*}{g_3^* + g_2^*} I^* \phi \quad (5.33)$$

De manera análoga, podemos escribir la desaparición de fotones por absorción como:

$$-\frac{d\phi}{dt} = c\sigma_{4 \rightarrow 3} I_{(4)} \phi \quad (5.34)$$

donde  $I_{(4)}$  es el número, por unidad de volumen, de átomos de iodo atómico en el estado fundamental y en el subnivel  $F = 4$ , y  $\sigma_{4 \rightarrow 3}$  es la sección eficaz de absorción para la transición  $F = 4 \rightarrow F' = 3$ .

Como los subniveles del estado inferior  $^2P_{3/2}$  también se encuen-

train en equilibrio, tendremos una expresión análoga a la (5.32):

$$I_{(4)} = I \frac{g_4}{g_1 + g_2 + g_3 + g_4} \quad (5.35)$$

donde  $I$  es el número total de átomos de iodo en el estado fundamental por unidad de volumen y  $g_1, g_2, g_3, g_4$  son las degeneraciones de los respectivos subniveles. Llevando (5.35) a (5.34):

$$-\frac{d\phi}{dt} = c\sigma_{4 \rightarrow 3} I \frac{g_4}{g_1 + g_2 + g_3 + g_4} \phi \quad (5.36)$$

Teniendo en cuenta (1.26) y las dos expresiones (1.48), podemos poner:

$$\frac{\sigma_{4 \rightarrow 3}}{g_3^*} = \frac{\sigma_{3 \rightarrow 4}}{g_4} \quad (5.37)$$

de modo que (5.36) también se escribe:

$$-\frac{d\phi}{dt} = c\sigma_{3 \rightarrow 4} \frac{g_3^*}{g_1 + g_2 + g_3 + g_4} I \phi \quad (5.38)$$

La ecuación de velocidad (1.50) del apartado 1.1.7 se escribe entonces, usando (5.33) y (5.38):

$$\frac{d\phi}{dt} = c\sigma_{3 \rightarrow 4} \frac{g_3^*}{g_3^* + g_2^*} I^* - c\sigma_{3 \rightarrow 4} \frac{g_3^*}{g_1 + g_2 + g_3 + g_4} I \phi - \beta \phi \quad (5.39)$$

donde  $\beta$  viene dado por (5.30) y, como dijimos al comienzo de este apartado, despreciamos el término de emisión espontánea. Llamando  $g_T = g_1 + g_2 + g_3 + g_4$  y  $g_T^* = g_3^* + g_2^*$ , degeneraciones totales de los niveles inferior y superior, respectivamente, y agrupando términos, (5.39) queda finalmente:



$$\frac{d\phi}{dt} = \left\{ c\sigma_{3 \rightarrow 4} \frac{g_3^*}{g_T^*} \left[ I^* - \frac{g_T^*}{g_T} I \right] - \beta \right\} \phi \quad (5.40)$$

que es la ecuación de velocidad de la densidad de fotones buscada.

#### 5.2.1.3. Simulación del bombeo

Para representar el destello hemos utilizado las curvas, normalizadas a la unidad, determinadas experimentalmente tal como se describió en el apartado 3.5.5 (figuras 30-33). Puesto que las curvas experimentales correspondientes al bombeo a  $\lambda = 250$  nm y a  $\lambda = 200$  nm tienen formas muy similares, se han utilizado en la simulación del bombeo las formas de las curvas del destello correspondientes al bombeo a  $\lambda = 250$  nm. El número total de cuantos luminosos absorbidos a  $\lambda > 220$  nm fué determinado en nuestro laboratorio para una energía de descarga de 538 J [233]. El rendimiento fraccional  $p^*$  de átomos de iodo excitados formados en la fotólisis a  $\lambda > 220$  nm (o sea,  $p^* = I^*/(I + I^*)$ , siendo  $I$  e  $I^*$  las concentraciones iniciales de átomos de iodo en el estado fundamental y excitado, respectivamente, producidos en la fotólisis) se ha tomado como 0,92 [72], [73]. Para  $\lambda < 220$  nm se han estimado tanto el rendimiento fraccional  $p^*$  (que se ha tomado como 0,5) como la luz absorbida teniendo en cuenta las cantidades de productos formados en la fotólisis. A partir de los fotones absorbidos a 538 J de energía de descarga se pueden determinar fácilmente los fotones absorbidos a 1197 J de energía de descarga, puesto que conocemos experimentalmente la relación entre las áreas bajo las curvas de los destellos emitidos por la lámpara a la longitud de onda deseada y a las diversas energías de descarga (figura 31, apartado 3.5.5). Suponemos en este cálculo que las áreas bajo las curvas del destello son proporcionales al número de fotones emitidos en el caso considerado.

TABLA XXIX

Energía de descarga (Julios)	Densidad de fotones absorbidos (fotones/cm <sup>3</sup> )	
	$\lambda > 220 \text{ nm}$	$\lambda < 220 \text{ nm}$
538	$1,41 \times 10^{16}$	$7,5 \times 10^{16}$
1197	$3,16 \times 10^{16}$	$1,95 \times 10^{17}$

Los valores utilizados para la densidad de fotones absorbidos en el programa de cálculo se especifican en la tabla XXIX.

Hemos hecho pruebas para comprobar la dispersión que se puede introducir en el modelo sobre estos números ( $\lambda > 220 \text{ nm}$ ) de modo que se obtengan todavía unos resultados razonablemente acordes con los experimentales. La descomposición total es sensible a la luz absorbida y la anchura del pulso láser al rendimiento fraccional  $p^*$ . Hemos observado que nuestro modelo puede tolerar cambios de  $\pm 30\%$  en el número de fotones absorbidos y de aproximadamente la mitad de este número para el rendimiento fraccional.

#### 5.2.1.4. Integración numérica

Para efectuar la integración numérica de las ecuaciones diferenciales se utilizó el programa DESUB [246]. El método se basa en el ajuste de las aproximaciones a una función racional del intervalo de discretización  $h$  y subsiguientes extrapolaciones a intervalos de tamaño cero,  $h = 0$ . Se aplica extrapolación racional a una regla de integración de medio punto modificada.

En condiciones ordinarias el paso de integración fue de  $0,1 \times 10^{-2} \mu s$  y la concentración de los diferentes productos se imprimió cada  $0,1 \mu s$ . Una vez que termina la integración el programa representa la evolución de las variables dependientes en función de la variable in dependiente.

En los primeros intentos de usar el programa surgieron algunos problemas. Al principio la integración de las ecuaciones diferenciales mostró signos de inestabilidad: el tiempo de computación era excesivo y el programa finalmente no convergía. Estas dificultades eran introducidas principalmente por los grandes y repentinos cambios con el tiempo de la densidad de los fotones. El comportamiento de la rutina se mejóro considerablemente mediante la utilización de un concepto de error relativo como criterio de convergencia en vez del error standard inicial. No obstante, la obtención de la adecuada estabilidad requiere la imposición de dos restricciones: a no ser que la densidad de fotones supere un valor mínimo y la inversión de población alcance el umbral, la velocidad de cambio de la densidad de fotones se mantiene nula.

No se introdujo explícitamente en las ecuaciones un balance de masas, lo que permite usar el mismo como una prueba de la bondad de los resultados computados. Encontramos que con nuestro programa, que escribe las concentraciones con tres dígitos significativos, la suma de los errores de redondeo es mayor que la desviación en el balance de masa. Esta evidencia sugiere que los errores acumulativos en la rutina son menores que un 0,1%. Las condiciones iniciales utilizadas son las de los experimentos descritos en el capítulo 4.

En el apéndice I se muestra un listado del programa utilizado.

### 5.2.2. Resultados y discusión

#### 5.2.2.1. Productos de descomposición

Más que productos de descomposición del láser de iodo usando  $\text{CH}_3\text{I}$  como medio activo, estos productos se deberían considerar como productos formados en la fotólisis de destello del  $\text{CH}_3\text{I}$ , puesto que su formación no es sensible (dentro de los errores de los datos experimentales y calculados) a la obtención o no de oscilación láser en el experimento. En consecuencia, estos resultados no se ven afectados por la velocidad con que cambia la densidad de fotones ni por el valor de la sección eficaz de emisión estimulada. Por esta razón los resultados acerca de la sección eficaz y emisión láser se discutirán más adelante.

Las concentraciones de  $\text{CH}_3\text{I}$  y de los principales productos de descomposición,  $\text{C}_2\text{H}_6$ ,  $\text{CH}_4$  y  $\text{I}_2$  en función del tiempo se muestran en las figuras 73-75. A partir del carácter asintótico de estas curvas, excluyendo las del  $\text{I}_2$ , se puede deducir que a los 30  $\mu\text{s}$  las reacciones están casi completas, de modo que estos valores calculados a 30  $\mu\text{s}$  se pueden considerar como una buena aproximación a los valores finales y compararlos, por tanto, a los determinados experimentalmente. En la tabla XXX se presentan estos valores y se comparan con los resultados experimentales correspondientes a una amplia variedad de situaciones distintas. El acuerdo entre los valores experimentales y los calculados parece razonable, sobre todo teniendo en cuenta que los valores experimentales están afectados de un error de  $\sim 10\%$ . Únicamente en dos casos ( $\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$  1:9 a 1197 J

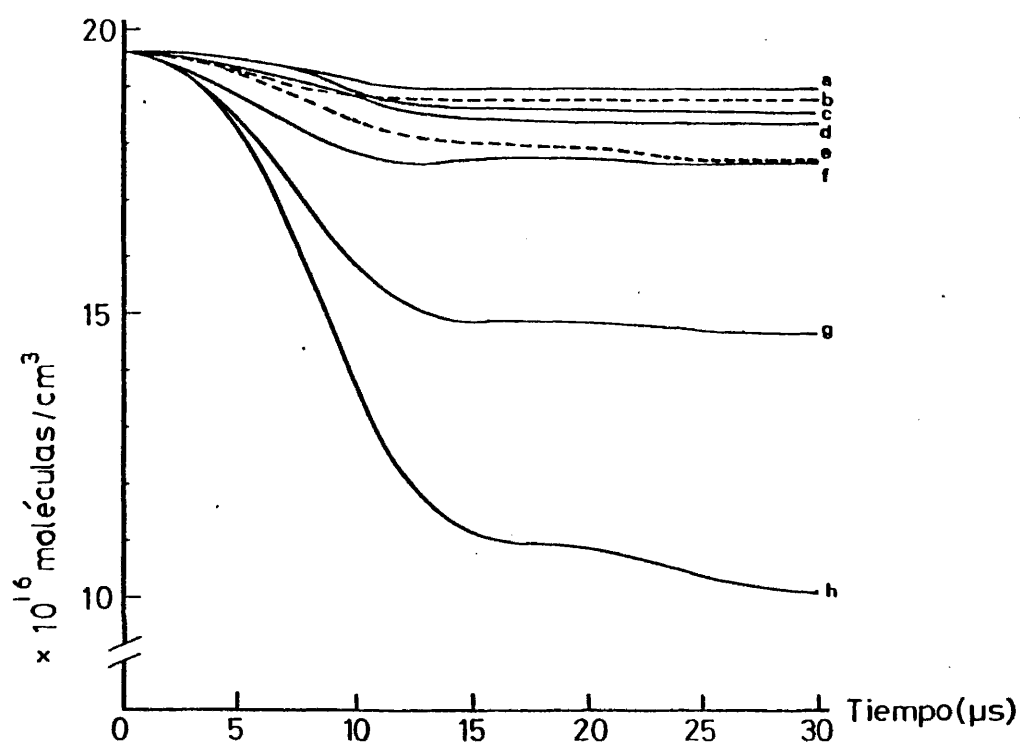


Figura 73.- Evolución calculada de la concentración de  $\text{CH}_3\text{I}$  durante la fotólisis de destello del mismo. Casos:

- a)  $\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$  1:9.  $E = 538 \text{ J}$ ;  $\lambda > 220 \text{ nm}$ .
  - b)  $\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$  1:9.  $E = 1197 \text{ J}$ ;  $\lambda > 220 \text{ nm}$ .
  - c)  $\text{CH}_3\text{I}/\text{Ar}$  1:9.  $E = 538 \text{ J}$ ;  $\lambda > 220 \text{ nm}$ .
  - d)  $\text{CH}_3\text{I}$  puro.  $E = 538 \text{ J}$ ;  $\lambda > 220 \text{ nm}$ .
  - e)  $\text{CH}_3\text{I}/\text{Ar}$  1:9.  $E = 1197 \text{ J}$ ;  $\lambda > 220 \text{ nm}$ .
  - f)  $\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$  1:9.  $E = 538 \text{ J}$ ;  $\lambda > 165 \text{ nm}$ .
  - g)  $\text{CH}_3\text{I}/\text{Ar}$  1:9.  $E = 538 \text{ J}$ ;  $\lambda > 165 \text{ nm}$ .
  - h)  $\text{CH}_3\text{I}$  puro.  $E = 538 \text{ J}$ ;  $\lambda > 165 \text{ nm}$ .
- ( $E$  = Energía de descarga;  $\lambda$  = longitud de onda de la radiación de bombeo).

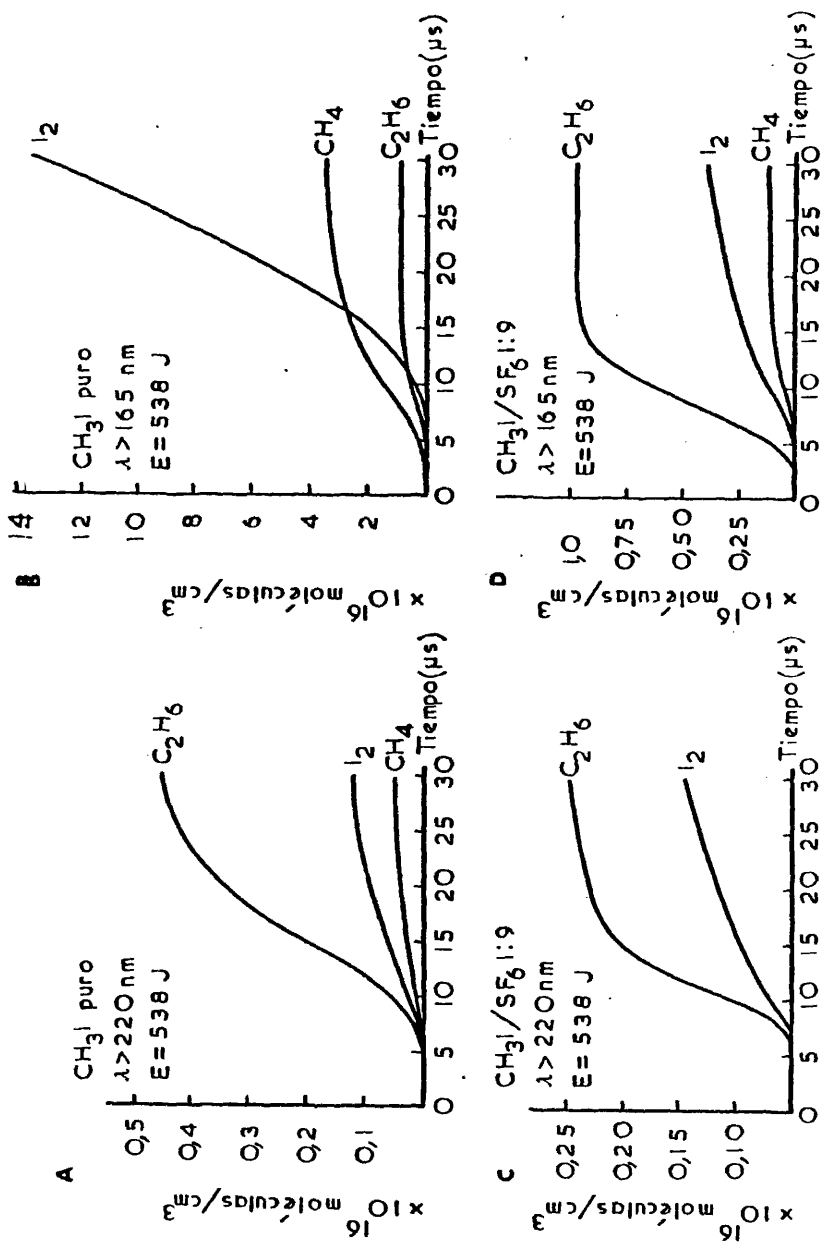


Figura 74.- Evolución calculada de los productos generados en la fotólisis de destello del  $\text{CH}_3\text{I}$ . E= energía de descarga;  $\lambda$ = longitud de onda de la radiación de bombeo.

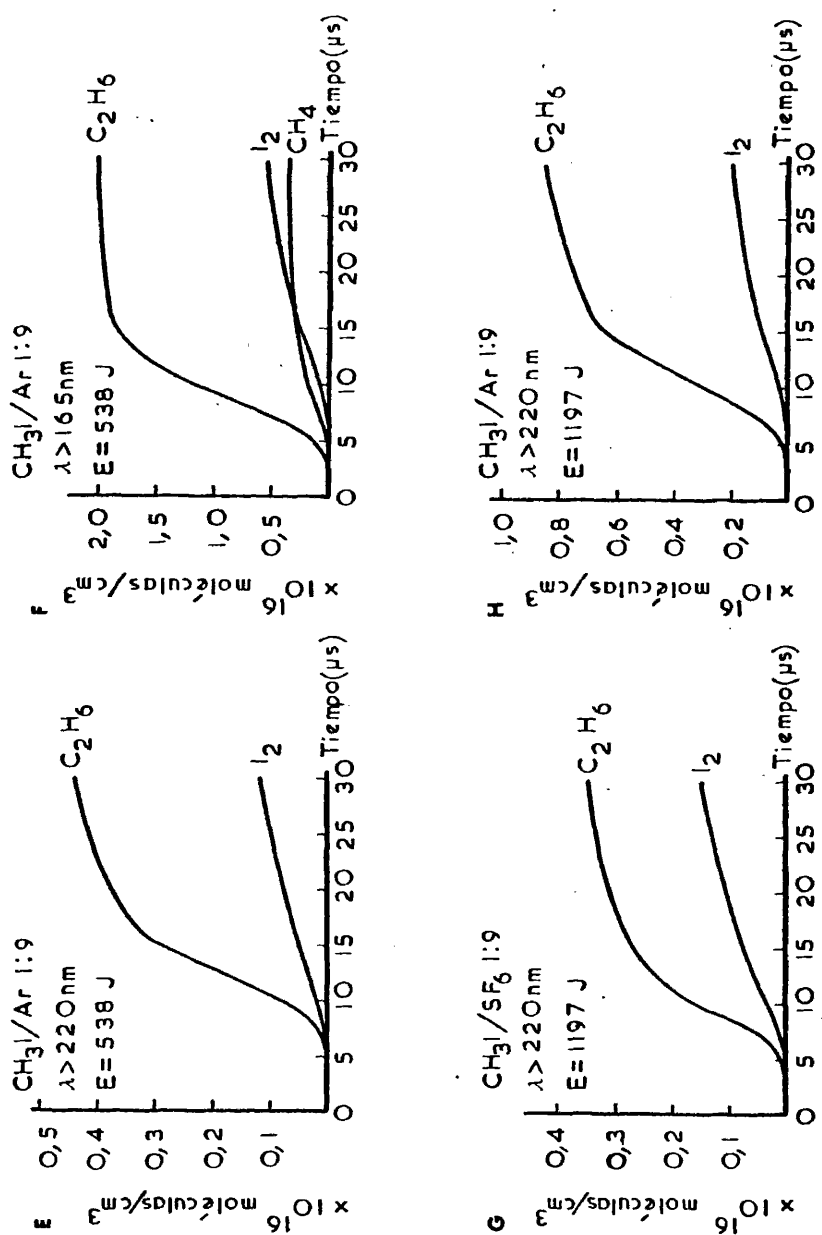


Figura 75.- Evolución calculada de los productos generados en la fotólisis de destello del CH<sub>3</sub>I. E = energía de descarga.  $\lambda$  = longitud de onda de la radiación de bombeo.

de energía de descarga y bombeo a  $\lambda > 220$  nm y  $\text{CH}_3\text{I}/\text{Ar}$  1:9 a 538 J de energía de descarga y bombeo a  $\lambda > 165$  nm) no hay acuerdo entre los valores experimentales y los calculados, si bien esta divergencia aparece únicamente en lo que concierne a los productos de la fotólisis puesto que, como veremos más adelante, tanto las características temporales de la emisión láser como la ganancia son predichas correctamente también en estos dos casos.

Esta falta de ajuste de los resultados calculados a los experimentales en los dos casos señalados se puede explicar (y prever) en cuanto se tienen en cuenta las limitaciones de nuestro modelo y las condiciones de validez del mismo. Nuestro modelo es una versión necesariamente muy simplificada de un proceso sumamente complejo y, de hecho, está pensado para el caso en que no se deposita demasiada energía en los fragmentos originados en la fotólisis y la descomposición no es demasiado grande. Fuera de estos límites la mayor cantidad de especies presentes junto con la mayor reactividad de las mismas puede complicar extraordinariamente el problema. Por esta razón, el modelo funciona especialmente bien a la más baja energía de descarga (538 J) y cuando se filtra la radiación de bombeo ( $\lambda > 220$  nm), puesto que el filtro elimina gran parte de los procesos correspondientes a los radicales más energéticos. Cuando se elimina el filtro aparecen en el medio más radicales y más energéticos y se hace necesario el seleccionar únicamente los procesos más importantes en que intervienen los mismos si se quiere mantener el modelo en condiciones de manejabilidad. Así, por ejemplo, parece razonable el pensar que los radicales metilo vibracionalmente excitados no pierden toda su energía en un solo choque sino que son necesarios varios choques antes de



TABLA XXX

Resultados calculados y comparación con los resultados experimentales correspondientes a los productos de descomposición del laser de todo con  $\text{CH}_3\text{I}$  como medio activo. Los datos son porcentajes sobre el  $\text{CH}_3\text{I}$  inicial calculados sobre el volumen iluminado de la cámara de reacción.

ENERGIA DE DESCARGA (J)	CONDICIONES		$\text{CH}_3\text{I}$			$\text{CH}_4$			$\text{C}_2\text{H}_6$			$\text{C}_2\text{H}_4$		
	SUSTRATO	BOMBEO <sup>a)</sup>	b	c		b	c		b	c		b	c	
538	$\text{CH}_3\text{I}$ pufo	$\lambda > 165\text{nm}$	56,68 <sup>d)</sup>	48,3	19,32 <sup>d)</sup>	18,4	0,26	2,97	5,0	12,47 <sup>d)</sup>	9,2			
538	$\text{CH}_3\text{I}$ pufo	$\lambda > 220\text{nm}$	6,01	6,15	0,12	0,26	2,35	—	—	—	0,13			
538	$\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$ 1:9	$\lambda > 165\text{nm}$	9,35 <sup>d)</sup>	9,23	0,89 <sup>d)</sup>	0,64	3,57 <sup>d)</sup>	3,8	0,66 <sup>d)</sup>	0,32				
538	$\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$ 1:9	$\lambda > 220\text{ nm}$	2,67	2,46	0,039	0,028	1,29	1,02	—	—	0,014			
1197	$\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$ 1:9	$\lambda > 220\text{nm}$	8,26	4,0	0,034	0,06	4,24	1,77	—	—	0,03			
538	$\text{CH}_3\text{I}/\text{Ar}$ 1:9	$\lambda > 165\text{nm}$	13,9 <sup>d)</sup>	24,9	2,0 <sup>d)</sup>	1,86	5,4 <sup>d)</sup>	10,28	0,54 <sup>d)</sup>	0,93				
538	$\text{CH}_3\text{I}/\text{Ar}$ 1:9	$\lambda > 220\text{ nm}$	5,2	5,2	0,019	0,016	2,23	2,26	—	—	0,008			
1197	$\text{CH}_3\text{I}/\text{Ar}$ 1:9	$\lambda > 220\text{nm}$	11,3	9,54	0,046	0,034	5,2	4,4	—	—	0,017			

a) Longitud de onda de la radiación de bombeo. b) Valores experimentales [23]. c) Valores calculados.  
d) Resultados obtenidos a 500 J de energía de descarga. e) Solamente se detectan trazas.

que se desactiven completamente. Esto quiere decir que en el medio estarán presentes radicales metilo con diferentes cantidades de energía vibracional y, por tanto, con diferentes reactividades. Un ajuste completo del proceso exigiría el tener en cuenta este hecho. Siguiendo en la misma línea de razonamiento, al aumentar la energía de descarga pueden comenzar a ser importantes procesos que no lo son a energías más bajas. Además, al aumentar la energía de descarga también se incrementa la temperatura del medio por lo que sería necesario tener en cuenta la dependencia de las constantes de velocidad de las diversas reacciones con la temperatura; dependencia que no se conoce de manera precisa en la mayoría de los casos.

Los procesos señalados son fenómenos que complican la cinética y dejan sentir su efecto en primer lugar sobre el balance de productos finales de la fotólisis como muestra el hecho, ya señalado, de que en los dos casos considerados el modelo reproduce bien las características de la emisión láser y predice correctamente la ganancia del láser (ver más adelante, apartados 5.2.2.3 y 5.2.2.4). Únicamente cuando estos procesos intervienen todos a la vez (o sea, cuando no se filtra la radiación de bombeo y la energía de descarga es de 1197 J) dejan sentir también su efecto sobre la emisión láser.

El modelo explica cuantitativamente los efectos de los diferentes factores que juegan un papel en la descomposición del  $\text{CH}_3\text{I}$ . Así, el modelo muestra que la fuerte descomposición encontrada en la irradiación sin filtro o sin gases inertes es una consecuencia de dos factores: a) un importante incremento en la absorción de luz (el  $\text{CH}_3\text{I}$  absorbe fuertemente a  $\lambda < 2220$  nm) y b) el papel del radical metilo vibracionalmente excitado

(reacción 21). Los efectos de la longitud de onda y de los gases inertes son, como se ve en la tabla XXX, reproducidos adecuadamente por el programa. Es notable la fuerte influencia del  $\text{SF}_6$  sobre la recombinación iodo-radical metilo (reacciones 8 y 18). En las figuras 74-75 se aprecia asimismo, claramente el periodo de inducción existente en la aparición de productos desactivadores del iodo excitado, en buen acuerdo con la discusión sostenida en el apartado 5.1.5.

El acuerdo entre los resultados de los productos de descomposición y los valores calculados no es sorprendente. Después de todo el modelo se construyó tomando en cuenta los resultados experimentales a fin de introducir algunas de las constantes de velocidad desconocidas. Lo que se debe resaltar es la capacidad de nuestro modelo para predecir otros parámetros láser diferentes, como son la ganancia, sección eficaz de emisión estimulada y comportamiento temporal bajo diversas condiciones experimentales, tal como veremos más adelante.

#### 5.2.2.2. Cálculo de la inversión de población

La inversión de población se define (apartado 1.1.4) como  $\Delta N = I^* - (g^*/g_T)I$ , donde  $I^*$  es el número total de átomos de iodo electrónicamente excitados por unidad de volumen,  $I$  el número total de átomos de iodo en el estado fundamental por unidad de volumen y  $g^*$  y  $g_T$  las degeneraciones totales de los niveles excitados y fundamental, respectivamente (apartado 5.2.1.2). En la figura 76 se representa la variación de  $\Delta N$  con el tiempo en ausencia de emisión láser. Conviene remarcar que en estos cálculos la velocidad con que cambia la densidad de fotones se hace igual

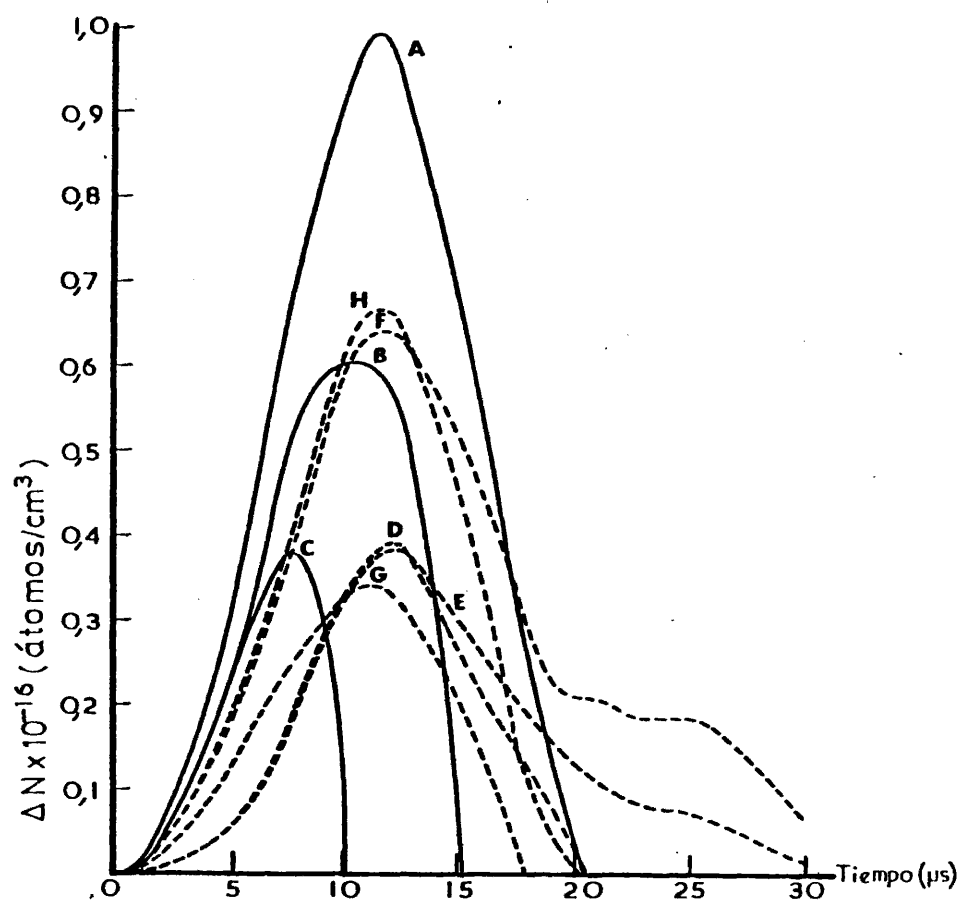


Figura 76.- Inversión de población calculada en función del tiempo.

- A)  $\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$  1:9.  $E = 538 \text{ J}$ ;  $\lambda > 165 \text{ nm}$ .
  - B)  $\text{CH}_3\text{I}/\text{Ar}$  1:9.  $E = 538 \text{ J}$ ;  $\lambda > 165 \text{ nm}$ .
  - C)  $\text{CH}_3\text{I}$  puro.  $E = 538 \text{ J}$ ;  $\lambda > 165 \text{ nm}$ .
  - D)  $\text{CH}_3\text{I}/\text{Ar}$  1:9.  $E = 538 \text{ J}$ ;  $\lambda > 220 \text{ nm}$  (ver texto).
  - E)  $\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$  1:9.  $E = 538 \text{ J}$ ;  $\lambda > 220 \text{ nm}$  (ver texto).
  - F)  $\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$  1:9.  $E = 1197 \text{ J}$ ;  $\lambda > 220 \text{ nm}$ .
  - G)  $\text{CH}_3\text{I}$  puro.  $E = 538 \text{ J}$ ;  $\lambda > 220 \text{ nm}$ .
  - H)  $\text{CH}_3\text{I}/\text{Ar}$  1:9.  $E = 1197 \text{ J}$ ;  $\lambda > 220 \text{ nm}$ .
- ( $E$  = energía de descarga;  $\lambda$  = longitud de onda de la radiación de bombeo).

TABLA XXXI

Velocidades calculadas de diferentes procesos que afectan a la inversión de población al tiempo en que la inversión alcanza un máximo.  
Unidades: molécula  $\times \text{cm}^{-3} \times \text{s}^{-1} \times 10^{-20}$

	DESACTIVACION DE I*				CONTRIBUCIONES POSITIVAS	
	Desactivador (número de reacción <sup>b)</sup> )				A Δ N	
	CH <sub>3</sub> I (3-4)	I <sub>2</sub>	CH <sub>3</sub> (7-8)	(CH <sub>3</sub> ) <sub>v</sub> + (CH <sub>3</sub> ) <sub>t</sub>	Bombeo	Reacción 18 <sup>b)</sup>
CH <sub>3</sub> I, λ > 220nm, 538J	5,07	0,85	0,46	0,56	10,42	0,65
CH <sub>3</sub> I, λ > 165nm, 538J	9,77	4,71	1,84	3,01	39,87	5,94
CH <sub>3</sub> I/SF <sub>6</sub> 1:9, λ > 220nm, 538J	4,6	0,71	3,39	0,063	9,4	4,5
CH <sub>3</sub> I/SF <sub>6</sub> 1:9, λ > 220nm, 1197J	7,53	2,01	7,12	0,20	18,25	8,72
CH <sub>3</sub> I/SF <sub>6</sub> 1:9, λ > 165nm, 538J	12,52	6,26	16,67	0,27	39,57	43,97
CH <sub>3</sub> I/Ar 1:9, λ > 220nm, 538J	5,29	0,84	0,97	0,043	9,82	1,70
CH <sub>3</sub> I/Ar 1:9, λ > 220nm, 1197J	8,9	2,6	2,25	0,15	19,45	4,2
CH <sub>3</sub> I/Ar 1:9, λ > 165nm, 538J	14,1	7,5	6,28	3,92	43,12	28,24

a) En las condiciones se indica: sustrato, longitud de onda de la radiación de bombeo y energía de descarga.

b) Ver tabla XXVIII para identificación.

a cero, de modo que el valor así calculado de  $\Delta N$  es independiente de la sección eficaz de emisión estimulada como se ha señalado anteriormente. Las velocidades de las diversas contribuciones, tanto positivas como negativas, a  $\Delta N$  en el instante en que la inversión de población es máxima se presentan en la tabla XXXI. Los hechos más importantes de estos datos son los siguientes. Aunque en cada caso el factor de desactivación cuantitativamente dominante es la desactivación por  $\text{CH}_3\text{I}$ , las otras contribuciones son las que determinan realmente la forma de las curvas de  $\Delta N$ . Así, la fotólisis del  $\text{CH}_3\text{I}$  con todo el arco de Xenon ( $\lambda > 165 \text{ nm}$ ) se caracteriza por un máximo temprano de  $\Delta N$  (curva C de figura 76). La formación de importantes y efectivos desactivadores del  $\text{I}^*$ , principalmente  $\text{I}_2$  y radical metilo, origina la rápida disminución de  $\Delta N$  a un tiempo en que el bombeo del destello es intenso (de hecho, todavía incrementándose). La introducción de  $\text{SF}_6$  tiene efectos notables;  $\Delta N$ , curva A de figura 76, alcanza valores más altos y el máximo se retrasa. Sorprendentemente, este hecho no es debido directamente a una reducción de los productos de fotodescomposición como se podría pensar sino, como se aprecia claramente en la tabla XXXI, al efecto combinado del  $\text{SF}_6$  sobre la desactivación de los radicales metilo calientes y a la subsiguiente combinación de estos radicales con yodo en estado fundamental para originar nuevamente el sustrato (reacción 18). Esta desaparición de  $\text{I}$  influye favorablemente la inversión de población. La presencia de Ar tiene un efecto intermedio, confirmándose claramente que el Ar es un peor tercer cuerpo que el  $\text{SF}_6$  en la recombinación (reacción 18) así como un desactivador vibracional poco eficiente. Obviamente, los efectos señalados se amortiguan fuertemente cuando se suprimen las longitudes de onda por debajo de 220 nm. En este caso, tanto la descomposición primaria co-

mo la formación de radicales calientes se reducen drásticamente, de modo que el  $\text{SF}_6$  o Ar tienen poca posibilidad de actuación. A pesar de esto, los resultados presentan las mismas tendencias que anteriormente, si bien suavizadas. En particular, en la tabla XXXI se aprecia claramente la mayor efectividad del Ar que el  $\text{SF}_6$  como desactivador traslacional, lo que quedaba enmascarado en los resultados a  $\lambda > 165$  nm por la actuación del  $\text{SF}_6$  sobre los radicales vibracionalmente excitados. Las curvas D y E de la figura 76, correspondientes a los casos en que el  $\text{CH}_3\text{I}$  se diluye en Ar y  $\text{SF}_6$ , respectivamente, merecen una explicación. Como ya se indicó en el apartado 5.2.1.3, para representar el destello hemos utilizado las curvas experimentales. Pues bien, en los experimentos correspondientes a los dos casos que aquí estamos considerando la curva del bombeo tiene una subida más lenta en los primeros microsegundos que la que tiene en el caso en que se emplea  $\text{CH}_3\text{I}$  puro, lo que se traduce en que asimismo las curvas D y E de la figura 76 tienen una subida más lenta al principio que la curva G. Si se introduce en el modelo la misma forma de bombeo en los tres casos las curvas D y E coinciden en la subida con la G, manteniéndose el resto de las curvas sin modificaciones.

Los resultados cuantitativos reflejados en la tabla XXXI y en la figura 76 no hacen sino confirmar la interpretación efectuada en los apartados 5.1.3, 5.1.4.2.3, 5.1.4.3.1, 5.1.4.3.2 y 5.1.4.4 acerca del efecto de los gases inertes sobre el mecanismo del láser y ayudan, asimismo, a clarificar la discusión sostenida entonces. Del mismo modo, los resultados que proporciona el modelo a 1197 J de energía de descarga están completamente de acuerdo con la interpretación efectuada en los apartados 5.1.4.3.2 y 5.1.4.4.2.

### 5.2.2.3. Cálculo de la sección eficaz de emisión estimulada y de la ganancia

La sección eficaz de emisión estimulada es uno de los parámetros más importantes del láser y su conocimiento es necesario para el cálculo de las características temporales de la emisión láser. Consideramos que la determinación con éxito de la misma empleando nuestros valores calculados de  $\Delta N$  es una importante realización de nuestro modelo y una prueba positiva de su rendimiento.

La ganancia no saturada de pequeña señal viene dada por la expresión (apartado 1.1.4):

$$G = \exp \left\{ \sigma \times \Delta N \times L \right\} \quad (5.41)$$

donde:  $L$  es la longitud del medio activo. Por los mismos motivos ya indicados en el apartado 5.2.1.2 conviene expresar (5.41) en términos de sección eficaz de emisión estimulada correspondiente a la transición  $F' = 3 \longrightarrow F = 4$ . La expresión correspondiente se obtiene fácilmente como sigue. Teniendo en cuenta que en la expresión (5.33) podemos poner:

$$\frac{d\phi}{dt} = \frac{d\phi}{dz} \times \frac{dz}{dt} = c \times \frac{d\phi}{dz}$$

se tiene para la emisión estimulada:

$$\left( \frac{d\phi}{dz} \right)_{\text{emisión estimulada}} = \sigma_{3 \rightarrow 4} \frac{g_3^*}{g_T^*} I^* \phi \quad (5.42)$$

donde los distintos símbolos son los definidos en el apartado 5.2.1.2. Si multiplicamos ambos miembros de (5.42) por  $c$  convertimos la densidad



de fotones  $\phi$  en intensidad de radiación. En el resto de este apartado  $\phi$  va a representar entonces intensidad de radiación (no utilizamos el símbolo  $I$  para la intensidad para evitar confusiones con la densidad de átomos de iodo).

Procediendo del mismo modo, obtenemos de (5.38) para la intensidad absorbida:

$$\left(\frac{d\phi}{dz}\right)_{\text{absorción}} = \sigma_{3 \rightarrow 4} \frac{g_3^*}{g_T} I \phi \quad (5.43)$$

De (5.42) y (5.43) se sigue que la potencia por unidad de volumen que se añade a la señal inductora es (apartado 1.1.4):

$$\frac{d\phi}{dz} = \sigma_{3 \rightarrow 4} \frac{g_3^*}{g_T^*} I^* \phi - \sigma_{3 \rightarrow 4} \frac{g_3^*}{g_T} I \phi = \sigma_{3 \rightarrow 4} \frac{g_3^*}{g_T} \left(I^* - \frac{g_T^*}{g_T} I\right) \phi \quad (5.44)$$

que es la expresión equivalente a la (1.21) o (1.24) del apartado 1.1.4 y que da lugar a que en estas condiciones la expresión de la ganancia de pequeña señal (1.29) se escriba:

$$G = \exp \left\{ \sigma_{3 \rightarrow 4} \times \frac{g_3^*}{g_T^*} \times \Delta N \times L \right\} \quad (5.45)$$

donde

$$\Delta N \equiv \left(I^* - \frac{g_T^*}{g_T} I\right)$$

es la inversión de población total entre los niveles  $^2P_{1/2}$  y  $^2P_{3/2}$  de los átomos de iodo.

Tal como hemos explicado en el apartado 4.4.1.2 el valor de  $\Delta N$  correspondiente a nuestras medidas de ganancia es el máximo de inversión de población correspondiente a un bombeo dado. Como, además, nues-

trass medidas de ganancia corresponden a una oscilación completa, (5.45) se escribe, finalmente, en nuestro caso:

$$G = \exp \left\{ \sigma_{3 \rightarrow 4} \times \frac{g_3^*}{g_T^*} \times \Delta N_{\text{máx}} \times 2L \right\} \quad (5.46)$$

donde  $\Delta N_{\text{máx}}$  es el máximo de las curvas  $\Delta N$  (figura 76).

Como hemos mencionado en el apartado anterior los valores calculados de  $\Delta N$  no dependen de  $\sigma_{3 \rightarrow 4}$ . Por tanto, introduciendo en la ecuación (5.46) el valor calculado de  $\Delta N_{\text{máx}}$  (figura 76) y la ganancia obtenida experimentalmente podremos determinar el valor de  $\sigma_{3 \rightarrow 4}$ .

Hemos aplicado este procedimiento al caso más simple,  $\text{CH}_3\text{I}$  puro a  $\lambda > 220 \text{ nm}$  donde, el número de reacciones es mínimo así como el número de constantes de velocidad no conocidas con precisión, de modo que es el caso que debe proporcionar resultados más precisos. Se obtiene de este modo la sección eficaz de emisión estimulada  $\sigma_{3 \rightarrow 4} = 3,6 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ , que corresponde a 6 Torr de  $\text{CH}_3\text{I}$ . Este valor se compara bien con otros valores presentes en la literatura. Así, el valor de Zuev et al [69] para 77,6 Torr de  $\text{C}_3\text{F}_7\text{I}$ , deducido de sus valores para la anchura de línea de transición, 0,419 GHz, y el coeficiente de emisión espontánea experimental,  $A_{3 \rightarrow 4} = 5,1 \text{ s}^{-1}$  (se ha tenido en cuenta que, de acuerdo con [82] el valor experimental de  $A_{3 \rightarrow 4}$  dado en [69] debe ser multiplicado por 1,5), es de  $\sigma_{3 \rightarrow 4} = 5,3 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ ; Palmer y Gusinow [90] dan un valor de  $(2,6 \pm 0,5) \times 10^{-18} \text{ cm}^2$  para 20 Torr de  $\text{CF}_3\text{I}$ ; una extrapolación a bajas presiones de los valores obtenidos por Baker y King [91] proporciona para 10 Torr de  $\text{C}_3\text{F}_7\text{I}$  un valor de  $\sigma_{3 \rightarrow 4}$  comprendido entre  $2 \times 10^{-18}$  y  $3 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ ; los resultados de Fuss y Hohla [95], finalmente, pro-

porcionan un valor para  $\sigma_{3 \rightarrow 4}$  comprendido entre  $2 \times 10^{-18}$  y  $5 \times 10^{-18}$   $\text{cm}^2$  a presiones en torno a 20 Torr de  $\text{C}_3\text{F}_7\text{I}$ .

Nuestro valor de  $\sigma_{3 \rightarrow 4}$  para 6 Torr de  $\text{CH}_3\text{I}$  se puede extrapolar para el caso en que el  $\text{CH}_3\text{I}$  se diluye en diversos gases inertes utilizando los factores de ensanchamiento de la transición suministrados por la literatura. Hemos utilizado la expresión [95] :

$$\frac{1}{\sigma_{3 \rightarrow 4}} = \frac{g_3^*}{g_T^*} (\beta_0 + \sum_i \beta_i P_i) \quad (5.47)$$

donde  $\beta_0$  contiene pequeñas contribuciones del ensanchamiento Doppler y del ensanchamiento Zeeman causado por el débil campo magnético de las lámparas de destello,  $P_i$  es la presión del gas  $i$  y  $\beta_i$  es un coeficiente de ensanchamiento con la presión correspondiente al gas  $i$ . Los coeficientes  $\beta_i$  para los gases diluyentes utilizados por nosotros vienen dados en la tabla XXXII. En cuanto al valor de  $\beta_0$  para nuestro caso, en que siempre usamos 6 Torr de  $\text{CH}_3\text{I}$ , se deduce inmediatamente del valor que hemos calculado para  $\sigma_{3 \rightarrow 4}$ . En efecto, cuando no hay gas diluyente presente, la expresión (5.47) se escribe:

$$\frac{1}{\sigma_{3 \rightarrow 4}} = \frac{g_3^*}{g_T^*} \beta_0$$

TABLA XXXII (de [95])

M	$P_M/10^{15} \text{ cm}^{-2} \text{ Torr}^{-1}$
Ar	3,6
$\text{SF}_6$	5,0
$\text{CO}_2$	7,0

Usando entonces los valores  $\sigma_{3 \rightarrow 4} = 3,6 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ ,  $g_3^* = 7$ ,  $g_T^* = 12$  se obtiene inmediatamente el valor  $\beta_0 = 4,8 \times 10^{17} \text{ cm}^{-2}$  (tal como hemos efectuado el cálculo en  $\beta_0$  también está incluido el ensanchamiento por la presión correspondiente a los 6 Torr de  $\text{CH}_3\text{I}$ ). Llevando este valor a la expresión (5.47) y utilizando los valores de los coeficientes  $\beta_i$  dados en la tabla XXXII obtenemos inmediatamente los valores correspondientes a la sección eficaz de emisión estimulada para la transición  $F' = 3 \rightarrow F=4$  en los diversos casos que hemos considerado experimentalmente. Los resultados obtenidos se reflejan en la tabla XXXIII. En dicha tabla también se han indicado los valores en cada caso de la inversión de población umbral  $\Delta N_t$  (cuyo significado se ha descrito en el apartado 5.1.4.2.1) correspondiente a unas pérdidas en la cavidad del 30% (apartado 4.4.2.1). El cálculo de estos valores de  $\Delta N_t$  se ha realizado como sigue. Para compensar unas pérdidas del 30% en la cavidad es necesaria una ganancia  $G_t = 1,4$  (apartado 4.4.2.2). Aplicando entonces la expresión (5.45) (con  $2L$  en vez de  $L$ , puesto que las pérdidas indicadas corresponden a una oscilación completa) con los distintos valores de  $\sigma_{3 \rightarrow 4}$  dados en la tabla XXXIII, y teniendo en cuenta que  $G_t$  es siempre la misma, independientemente del sustrato utilizado y de la proporción de gas diluyente empleado (apartado 5.1.4.2.1), se obtienen los valores de  $\Delta N_t$  reseñados en la tabla.

Con los valores de la sección eficaz de emisión estimulada así determinados podemos retornar ahora a la ecuación (5.46) y, usando los valores de  $\Delta N_{\text{max}}$  suministrados por el modelo para los distintos casos, calcular la ganancia correspondiente. En la tabla XXXIV se indican los valores de la ganancia predichos por el modelo junto con los valores determinados experimentalmente (apartado 4.4.2.2). Desde luego, el valor

calculado para el caso  $\text{CH}_3\text{I}$  puro a  $\lambda > 220$  nm no tiene significado puesto que es simplemente el reverso de lo hecho para evaluar  $\sigma_{3 \rightarrow 4}$  en dichas condiciones. En los otros casos se observa un buen acuerdo entre los valores experimentales y los calculados, excepto en el caso  $\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$  a  $\lambda > 165$  nm en que el acuerdo es algo peor. No obstante, pensamos que esta pequeña discrepancia está dentro de los errores que se pueden esperar a partir de nuestra aproximación al problema.

#### 5.2.2.4. Cálculo de las características temporales de la emisión láser

Una vez calculadas las secciones eficaces de emisión estimulada podemos embarcarnos en el cálculo del comportamiento temporal de la emisión láser que, como ya hemos mencionado anteriormente, depende fuertemente de dichos parámetros. Los perfiles temporales de la emisión láser calculados y su comparación con los experimentales se ha representado en las figuras 77 y 78. Debe recordarse que, como ya indicamos en el apartado 4.2.2, si bien la reproducibilidad del comienzo y duración de la emisión láser es buena, no ocurre lo mismo con las intensidades, puesto que pequeñas diferencias en el alineamiento originan grandes diferencias en la intensidad. Asimismo, la constante de tiempo del detector de la emisión láser es de orden de  $0,1 \mu\text{s}$ , de modo que con esta resolución los experimentos únicamente representan la envolvente de una combinación de picos cuya estructura fina no es discriminada realmente. A estas limitaciones es necesario añadir la cruda descripción cinética de un fenómeno complejo como es la emisión láser. Teniendo en cuenta estas dificultades intrínsecas podemos considerar que los cálculos están en buen acuerdo con el experimento. Así, es bien reproducida la rápida caída de la señal

TABLA XXXIII

Secciones eficaces de emisión estimulada e inversiones de población umbral calculadas con el modelo

Condiciones		$\sigma_{3 \rightarrow 4} \times 10^{18} \text{ cm}^2$	$\Delta N_t \times 10^{-15} \text{ átomos/cm}^3$
Sustrato	Proporción de la mezcla		
CH <sub>3</sub> I puro	-	3,6	2,0
	1:1	3,4	2,1
CH <sub>3</sub> I/Ar	1:3	3,1	2,3
	1:9	2,5	2,9
	1:1	3,3	2,2
CH <sub>3</sub> I/CO <sub>2</sub>	1:3	2,8	2,6
	1:9	2,0	3,6
	1:1	3,4	2,1
CH <sub>3</sub> I/SF <sub>6</sub>	1:3	3,0	2,4
	1:9	2,3	3,1
	1:1	3,4	2,1

TABLA XXXIV

Ganancia calculada con el modelo y comparación con los resultados experimentales.

Condiciones			Ganancia	
Sustrato	bombeo a)	Energía de descarga	Calculada	Experimental
CH <sub>3</sub> I puro	$\lambda > 220 \text{ nm}$	538 J	1,8	1,8 $\pm$ 0,1
	$\lambda > 165 \text{ nm}$	538 J	1,9	2,0 $\pm$ 0,1
CH <sub>3</sub> I/SF <sub>6</sub>	$\lambda > 220 \text{ nm}$	538 J	1,6	1,7 $\pm$ 0,1
	$\lambda > 220 \text{ nm}$	1197 J	2,0	2,2 $\pm$ 0,2
	1:9 $\lambda > 165 \text{ nm}$	538 J	2,9	2,1 $\pm$ 0,2
CH <sub>3</sub> I/Ar	$\lambda > 220 \text{ nm}$	538 J	1,6	1,7 $\pm$ 0,1
	1:9 $\lambda > 165 \text{ nm}$	538 J	2,3	2,0 $\pm$ 0,1

a) Longitud de onda de la radiación de bombeo.

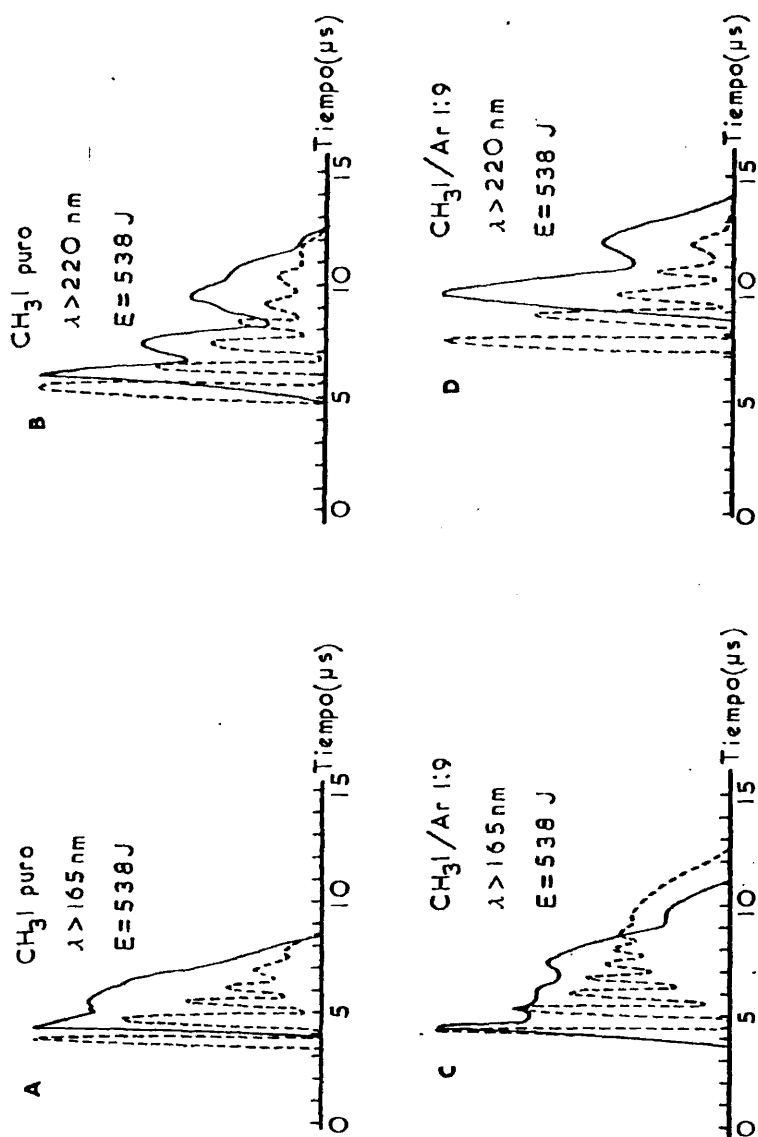


Figura 77.- Comportamiento temporal de la emisión láser, calculado (línea de puntos) y experimental (línea continua). E= energía de descarga;  $\lambda$  = longitud de onda de la radiación de bombeo.

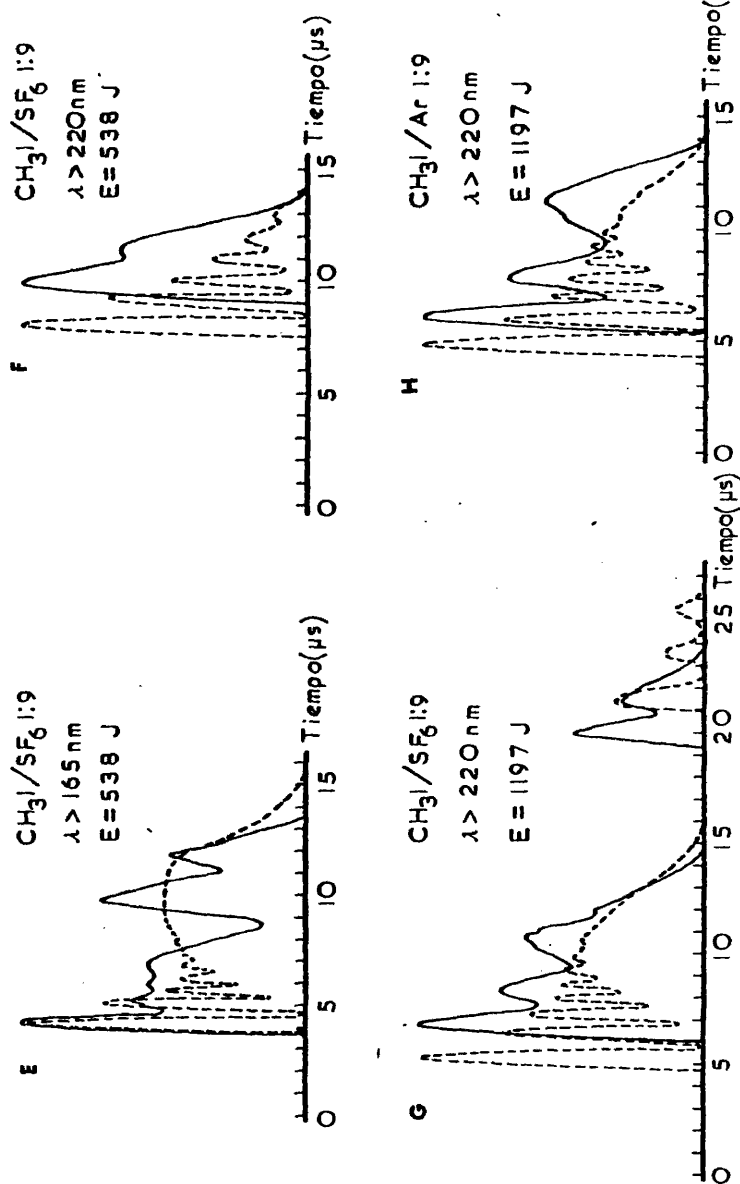


Figura 78.- Comportamiento temporal de la emisión láser, calculado (línea de puntos) y experimental (línea continua). F = energía de descarga;  $\lambda$  = longitud de onda de la radiación de bombeo.



cuando se fotoliza  $\text{CH}_3\text{I}$  puro con todo el arco de Xenon, curva A. También es bien reproducido el ensanchamiento del pulso que se origina cuando se eliminan las longitudes de onda cortas del bombeo, curva B, o cuando se añade  $\text{SF}_6$ , curva E, así como el efecto intermedio causado por el Ar, curva C. Los efectos combinados de eliminar del bombeo las longitudes de onda cortas y añadir gases inertes se reproducen también adecuadamente curvas D y F. Por último, cuando, filtrando la radiación de bombeo, se eleva la energía de descarga a 1197 J, el modelo reproduce adecuadamente el que en presencia de  $\text{SF}_6$  aparece una segunda emisión láser correspondiente al segundo máximo del destello, curva G, mientras que cuando el gas diluyente es Ar este hecho no ocurre, curva H. Estos resultados son una confirmación de que nuestros cálculos de  $\Delta N$  son básicamente correctos, puesto que la evolución de la inversión de población con el tiempo es, juntamente con las secciones eficaces, la causa fundamental del comportamiento temporal de la emisión láser, y éste es reproducido razonablemente por el cálculo.

## VI.. CONCLUSIONES

1.- La emisión láser y la ganancia del sistema en la fotólisis de destello del  $\text{CH}_3\text{I}$  están influenciadas por el mecanismo de fotodescomposición.

2.- El mecanismo de fotodescomposición del  $\text{CH}_3\text{I}$  varía con la longitud de onda de irradiación. La salida láser depende, por tanto, de este factor.

3.- Las bandas de absorción del  $\text{CH}_3\text{I}$  centradas en torno y por debajo de 200 nm juegan un papel relevante en la operación láser. La fotólisis del  $\text{CH}_3\text{I}$  a longitudes de onda menores que 200 nm produce un bombeo efectivo, originando tanto iodo atómico electrónicamente excitado como iodo atómico en su estado fundamental en una proporción tal que contribuye positivamente a la inversión de población y, por tanto, a la ganancia del láser.

4.- La eliminación del bombeo de las longitudes de onda por debajo de 200 nm actúa favorablemente sobre la emisión láser, incrementando su duración y retardando la extinción de la misma. Cuando la longitud de onda de irradiación es mayor que 165 nm se pueden conseguir efectos similares mediante la adición al  $\text{CH}_3\text{I}$  de gases moderadores, tales como Ar,  $\text{CO}_2$  o  $\text{SF}_6$ , siendo especialmente efectiva la presencia de  $\text{SF}_6$ .

5.- El valor del máximo de la inversión de población es más alto y se alcanza a tiempos posteriores en presencia de Ar o  $\text{SF}_6$  como gases moderadores que cuando se emplea  $\text{CH}_3\text{I}$  puro. Cuando la longitud de onda de irradiación es mayor que 165 nm la presencia de dichos gases moderadores hace que, además, la inversión de población aumente más rápidamente con el tiempo que en ausencia de los mismos. Por el contrario, la presencia

de los gases moderadores no afecta a la velocidad con que varía la inversión de población cuando se eliminan del bombeo las longitudes de onda por debajo de 220 nm.

6.- La presencia de gases moderadores ( $\text{Ar}$ ,  $\text{SF}_6$ ) no afecta sensiblemente a la ganancia de la operación láser.

7.- La eliminación de la radiación de bombeo de las longitudes de onda por debajo de 220 nm tiene un efecto beneficioso sobre la ganancia del láser a altas energías de descarga ( $\geq 1200$  J en nuestras condiciones experimentales).

8.- En contradicción con los antecedentes bibliográficos hemos demostrado que bajo condiciones adecuadas es posible obtener operación láser repetitiva (o sea, emisiones láser en destellos sucesivos sin necesidad de renovar el sustrato) utilizando  $\text{CH}_3\text{I}$  como medio activo.

9.- No existe un bombeo químico apreciable cuando se usa  $\text{CH}_3\text{I}$  como medio activo.

10.- El uso de pulsos de excitación estrechos afecta positivamente a la operación láser y permite la obtención de un mayor rendimiento energético en la misma.

11.- Desde el punto de vista fotoquímico se ha confirmado la formación predominante de radicales metilo vibracionalmente excitados en la fotólisis de destello del  $\text{CH}_3\text{I}$  a longitudes de onda menores que 220 nm y la formación de radicales metilo en su mayoría traslacionalmente excitados cuando la fotólisis de destello tiene lugar a longitudes de onda mayores que 220 nm.

12.- Los radicales metilo excitados vibracionalmente afectan negativamente a la operación láser puesto que causan descomposición secundaria del sustrato de modo que una parte importante del mismo es destruida irreversiblemente y se impide su contribución a la emisión láser. Este proceso contribuye asimismo a la aparición en el medio de productos desactivadores del iodo atómico electrónicamente excitado, tales como iodo molecular. La presencia de  $\text{SF}_6$  es especialmente efectiva moderando este proceso.

13.- Los principales procesos que afectan en forma negativa a la inversión de población y, por tanto, a la ganancia del láser son la desactivación del iodo atómico electrónicamente excitado por parte del propio sustrato, iodo molecular y radicales  $\text{CH}_3$  termalizados. La combinación de radicales  $\text{CH}_3$  fríos y iodo atómico en estado fundamental regenerando el sustrato contribuye en forma positiva a la inversión de población. Esta recombinación se ve favorecida por la presencia de  $\text{SF}_6$ , que actúa como tercer cuerpo.

14.- Cuando la longitud de onda de la radiación de bombeo es mayor que 165 nm es recomendable la utilización de un gas moderador, estando especialmente indicado el uso de  $\text{SF}_6$ .

15.- Se ha construido un modelo cinético, basado en los datos experimentales aportados que reproduce satisfactoriamente los principales hechos de la operación láser, tales como comportamiento temporal de la emisión láser, productos originados en la fotólisis y ganancia del sistema láser, en diferentes situaciones. El modelo permite el cálculo de inversiones de población así como de la sección eficaz de emisión estimulada. En particular, el valor de la sección eficaz de emisión estimulada así determi-

nado ( $\sigma = 3,6 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ ) está en buen acuerdo con los valores que se pueden encontrar en la bibliografía.

16.- El láser de iodo utilizado  $\text{CH}_3\text{I}$  como medio activo se puede operar en condiciones de descomposición muy próximas a las de cuando se usa, por ejemplo,  $\text{CF}_3\text{I}$ , si bien a una ganancia reducida debido a la fuerte desactivación por el sustrato. Este comportamiento similar a ganancia reducida podría ser de interés a fin de estudiar los detalles finos de la influencia de diversos parámetros sobre el láser de iodo en condiciones en que el sistema es muy sensible a cambios pequeños.

## VIII. APENDICE

Listado del programa utilizado para calcular los productos de fotodescomposición y el efecto láser en la fotólisis de destello del  $\text{CH}_3\text{I}$  de acuerdo con el modelo cinético propuesto. Este programa se ha elaborado en lenguaje FORTRAN IV. Junto con el listado se presenta la entrada de datos y la salida de resultados. Los datos de entrada aquí mostrados corresponden al caso  $\text{CH}_3\text{I}/\text{SF}_6$  1:9 a la energía de descarga de 538 J y con longitud de onda de la radiación de bombeo mayor que 165 nm.

```

IMPLICIT REAL*8(A-H,J-Z)
REAL*4 VCFOT,VPINV,VCH3F,VCH3T,VCH3V,VI0002,VTIEM
INTEGER*2 HCRA(4)
EXTERNAL ECDIF,SC,DEOUT
DIMENSION TITULO(20),CMEN(20),CINIC(20)
COMMONGADDSFCC,DEGS,DEW1,GASIN
COMMONGACOTESOCK(50),EXT(5),FOT(5),PCIEN(5,2),FORI(5,2)
COMMONGGAUSS9,BETA,TMX,NCENS,NEC
COMMONFLASHFY(9,3),FACN(3),NDATOS,IVOLT
COMMONGRAFF,VCFOT(300),VPINV(300),VCH3F(300),VCH3T(300),VCH3V(300),
11,VI0002(300),VTIEM(300),VC2H6(300),NPUN
COMMONPUNCHNUME,NPERF,NTPER
COMMONSALTO,NSALTO,INDICA
COMMONVELOR,V1,V3,V5,V7,V20,V22,V31,V32,EMIST,ABSEST,PERD
CK(1) SON LAS CONSTANTES DE VELOCIDAD, EXT(1) COEFICIENTES DE REER
PARA CADA LAMBDA A LA QUE ABSORBE EL CH3I, FOT(1) EL FACTOR DE DES
NORMALIZACION DEL BOMBEO A ESA LAMBDA, PCIEN(I) EL TANTO POR UNO
DE FORMACION DE IODUO O IODUO FUNDAMENTAL A CADA LAMBDA
SIGMA ES EL COEFICIENTE DE PERDIDAS, TMX EL TIEMPO DEL DESTELLO EN
ALCANZAR EL MAXIMO, NCENS EL CONTADOR DE PASOS POR SUBROUTINE
ECDIF, NEC EL NUMERO DE ECUACIONES=VARIABLES
NUME TIEMPO REAL INICIAION CALCULO, NPERF BANDERA PARA QUE PERFORE
UNA SOLA VEZ, NTPER LAPSO DE TIEMPO AL FINALIZARLO PERFORA LAS CONC
ENTRACIONES EN FORMAT ADECUADO PARA INICIALIZAR UN NUEVO CALCULO
NPERF = 0
CALL FHCEA(HORA)
EN HORA(1) ESTAN LAS HORAS EN HORA(2) LOS MINUTOS EN HORA(3) LOS SEGUNDO
CONVERSION DE HORAS A DIARIO Y DESPUES LOS MINUTOS
CALL NIMEP(HORA(1),1,2,NUM1,+1)
CALL NIMEP(HORA(2),1,2,NUM2,+1)
NUME TIEMPO EN MINUTOS
NUME = NUM1*60 + NUM2
GO TO 2
1 WRITE(6,1001)
001 FORMAT('ERROR EN LA CONVERSION DEL TIEMPO A BINARIO ' )
NUME = 0
2 CONTINUE
25 NCENS=0
NPERF = 0
INDICA=C
IFE NEC, EL NUMERO DE ECUACIONES, SI ES DIFERENTE DE CERO EL PROGRA
MA ENTENDE QUE SIGUE SIRO CASO, EPS ES LA TOLERANCIA DE ERROR
EPS=10**(-IEPS), H ES EL TAMANO DEL ESCALON INICIAL, TO Y TFIN LOS
TIEMPOS INICIAL Y FINAL EN MICROSEGUNDOS, DELTAT=SP ES EL INCREMEN
TO PARA IMPRIMIR A TIEMPOS ESPECIFICADOS
READ(5,501) (NEC,IEPS,H,J,TFIN,DELTAT)
IF (NEC.EQ.0) CALL EXIT
IF (IEPS.EQ.0) IEPS=5
EPS=10.0**(-IEPS)
READ(5,500) (NSALTO,NTPER,TIEM)
NTPER TIEMPO AL CUAL PERFORA CONCENTRACIONES UNA VEZ
TIEM ES EL TIEMPO A PARTIR DEL CUAL SOLO IMPRIME CADA NSALTO

```

```

WRITE(6,600)
WRITE(6,601)
WRITE(6,602)
WRITE(6,603) (NEC, EPS, H, TO, DELTAT)
WRITE(6,604) TFIN
WRITE(6,605) TTEM, NSAL, J, NTPER
READ(5,502) (TITULO(I), I=1,20)
WRITE(6,606) (TITULO(I), I=1,20)
C LEE 50 CONSTANTES DE VELOCIDAD ASK POR TARJETA Y LAS ESCRIBE SECU
C NCIALMENTE
READ(5,503) (CK(I), I=1,50)
WRITE(6,607)
WRITE(6,608) ((I, CK(I)), I=1,50)
C CONVERSION DE LAS CONSTANTES A MICROSEGUNDOS
DO 11 I=1,50
11 CK(I)=CK(I)*1.0E-6
C LEE Y ESCRIBE CONCENTRACIONES INICIALES
READ(5,503) (CINIC(I), I=1, NEC)
CIEXC = CINIC(1)
CIUDJ2 = CINIC(2)
CIFUN = CINIC(3)
CH3I = CINIC(4)
CH3FUN = CINIC(5)
CH3TRA = CINIC(6)
CH3VIB = CINIC(7)
C2H6 = CINIC(8)
CFOTON = CINIC(9)
CH3V2 = CINIC(10)
CH4 = CINIC(11)
WRITE(6,609)
WRITE(6,610)
WRITE(6,611) CIEXC, CIUDJ2, CIFUN, CH3I, CH3FUN, CH3TRA, CH3VIB, C2H6,
1 CFOTON, CH3V2
WRITE(6,611) CH4
16611 FORMAT(I, T3, 'CH4', A)
C LEE DEGS Y DGT LAS DEGENERACIONES DEL ESTADO EXCITADO Y
C FUNDAMENTAL RESPECTIVAMENTE,
C GASIN ES LA CONCENTRACION DE GAS INERTE, SIGMA ES EL COEFICIENTE
C DE PERDIDAS, TMX EL TIEMPO AL QUE ALCANZA EL MAXIMO EL FLASH
C EN MICROSEGUNDOS
READ(5,501) (IVCLT)
WRITE(6,650) (IVCLT)
READ(5,502) (DEGS, DEG2, GASIN, BETA, TMX)
READ(5,502) (SECC, EXT(1), EXT(2), FOT(1), FOT(2))
C SECC ES LA SECCION EFICAZ, EXT(1) Y EXT(2) LOS COEFICIENTES DE BIER
C A LAMPARAS LARGA Y CORTA FOT(1), FOTON(2) LOS TOTALES DE FOTONES A
C LAS LONGITUDES DE ONDA
C SECC ES IGUAL AL VALOR EXPERIMENTAL EN LITROS POR MOL MENOS 1 POR
C MICROSEG MENOS 1 MULTIPLICADO POR LA DEGENERACION DEL NIVEL
C F IGUAL 3 DEL 1- QUE ES 7
C SECCION EFICAZ EN LITROS POR MOL MENOS 1 POR MICROSEG MENOS 1
C IGUAL A 1.80548 POR EL 2 POR SECCION EFICAZ EN CM CUADRADO
C LEE TANTOS POR UNO DE CIEXC FORMADOS A LAMBDA 1 Y 2 PCIE(1,1) Y
C PCIE(2,1) Y LO MISMO PARA CIFUN PCIE(1,2) Y PCIE(2,2)
READ(5,503) PCIE(1,1), PCIE(2,1), PCIE(1,2), PCIE(2,2)

```



```

C      ESCRIBIR DE LO ANTERIOR
      WRITE(6,612)
      WRITE(6,612) DEGS,DEGI,GASIN,BETA,IMX
      WRITE(6,614)
      WRITE(6,615) SECC,EXT(1),EXT(2),FOT(1),FOT(2)
      WRITE(6,616)
      WRITE(6,617) PCIE(1,1),PCIE(2,1),PCIE(1,2),PCIE(2,2)
      IF(DELTA) 30,35,30
30    CALL DESP(DELTA,ECDIF,VEC,CINIC,TC,TFIN,H,EPS,SE,DEOUT)
      GO TO 40
35    CALL DE(ECDIF,VEC,CINIC,TC,TFIN,H,EPS,SE,DEOUT)
40    WRITE(6,618) NCENS
      CALL GRAFO
      GO TO 25
500  FORMAT(2I2,F5.1)
501  FORMAT(2I2,4E15.8)
502  FORMAT(20A4)
503  FORMAT(5E15.8)
600  FORMAT(1H1)
601  FORMAT(6,T4E,'PARAMETROS DE LA INTEGRACION',Q)
602  FORMAT(2X,'NUMERO DE ECUACIONES',2X,'TOLERANCIA DE ERROR',2X,'PASO
      1 INICIAL DE INTEGRACION',3X,'TIEMPO INICIAL Y FINAL',3X,'TIEMPO IN
      TERFUSION',Q)
603  FORMAT(9X,'NEC=',I2,I1A,'EPS=',E11.4,13X,'H=',E11.4,12X,'TD=',E11.
      14,8X,'DELTA=',E11.4)
604  FORMAT(180,'TFIN=',E11.4,Q)
605  FORMAT(2X,'A PARTIR DE',F5.1,'MICROSEG.',2X,'IMPULSO CADA',I2,2X,
      1 'PUNTOS',3X,'A LOS',I4,2X,'MINUTOS DE CALCULO PERFORA CONCENTR.',
      2 'Q')
606  FORMAT(6,25X,20A4)
607  FORMAT(6,6,5,10X,'CONSTANTES DE VELOCIDAD SEG-1',Q)
608  FORMAT(10(5X,5('K',I2,'=',E10.3),Q))
609  FORMAT(135,'CONCENTRACIONES INICIALES',Q)
610  FORMAT(6,T3,'CIEXC',T15,'CIOD02',T27,'CIFUN',T39,'CH31',T51,'CH3FJ
      1N',T63,'CH3TRA',T75,'CH3VIB',T87,'C2H6',T99,'CF3TON',T112,'CH3V2'
      2 ',Q)
611  FORMAT(10F12.4)
612  FORMAT(65,2X,'DEGENE. ESTADO EXCIT.',3X,'DEGENE. ESTADO FUN.',4X,
      1 'CONC. GAS INERTE',5X,'COEFICIENTE PERDIDAS',2X,'TIEMPO DEL MAXIMO
      2 (FLASH)',Q)
613  FORMAT(6X,'DEGS=',F4.0,15X,'DEGI=',F4.0, 3X,'GASIN=',E11.3,7X,,'SIG
      1MA=',E11.3,5X,'IMX=',E11.3)
614  FORMAT(66,7X,'SECCION EFICAZ',5X,'COEFIC. BEER LAMBDA1',4X,'COEFIC
      1. BEER',5X,'TOTAL FOTONES LAMBDA1',3X,'TOTAL FOTONES LAMBDA2',Q)
615  FORMAT(5X,'SECC=',E11.4,5X,'EXT(1)=',E11.4,5X,'EXT(2)=',E11.4,5X,
      1 'FOT(1)=',E11.4,5X,'FOT(2)=',E11.4)
616  FORMAT(66,2X,'TANTO POR UNO 1000 EXCIT. FORMADO A LAMBDA 1Y2',2X
      1 'TANTO POR UNO 1000 FUNDA. FORMADO A LAMBDA 1Y2')
617  FORMAT(6,2X,'PCIE(1,1)=',E11.4,2X,'PCIE(2,1)=',E11.4,2X,
      1 'PCIE(1,2)=',E11.4,2X,'PCIE(2,2)=',E11.4)
618  FORMAT(110,27X,'NUMERO DE EVALUACIONES DE LAS ECUACIONES',I6)
650  FORMAT(6,2X,'INDICE SELECCIONADOR ENERGIA DESCARGA 1VOLT',',I4)
      END

```

```

SUBROUTINE ECDIF(CINIC, I, DLO)
C
C  CALCULO DE INCREMENTOS FINITOS DE LAS ECUACIONES DIFERENCIALES
C  PRIMERO SE CALCULAN VARIAS VELOCIDADES Y FINAL. LAS ECUACIONES
  IMPLICIT REAL*8(A-H, O-Z)
  REAL*4 VCFOT, VPINV, VCH3F, VCH3T, VCH3V, VI0002, VTIEH
  REAL*4 VC2H6
  DIMENSION DEO(20), ABSOR(5), CINIC(20)
  COMMON/ACDSECC, DEGS, DEG1, GASIN
  COMMON/COTESACK(50), EX(5), FOT(5), PCJEN(5,2), FORI(5,2)
  COMMON/GAUSSN, BETA, TMX, NCFNS, NEC
  COMMON/GRAFR VCFOT(300), VPINV(300), VCH3F(300), VCH3T(300), VCH3V(30
  1), VI0002(300), VTIEH(300), VC2H6(300), NPUN
  COMMON/SALTICNTEM, NSALTJ, INDICA
  COMMON/VELOR V1, V3, V6, V7, V20, V22, V31, V32, ENIEST, ABSEST, PERD
C
C  CK(I) SON LAS CONSTANTES DE VELOCIDAD, EX(I) COEFICIENTES DE BEER
C  PARA CADA LAMBDA A LA QUE ABSORBE EL CH3I, FOT(I) EL FACTOR DE NOR
C  MALIZACION DEL BOMBEO A ESA LAMBDA, PCJEN(I) EL TANTO POR UNO DE
C  FORMACION DE IOJO* O IOJO A LAS DIFERENTES LAMBDA
C  SOLO SE ADMITEN SOLUCIONES POSITIVAS PARA LAS CONCENTRACIONES
C  FOR(I) LA FORMACION DE CADA TIPO DE IOJO A CADA LAMBDA
  DO 1000 I=1, NCF
    CINIC(I)=DAPS(CINIC(I),
10000 CONTINUE
C
C  EQUIVALENCIA ENTRE VECTOR CINIC Y NOMBRES USADOS ADI
    CIEXC = CINIC(1)
    CI0002 = CINIC(2)
    CI1UN = CINIC(3)
    CH3I = CINIC(4)
    CH3FIN = CINIC(5)
    CH3T9A = CINIC(6)
    CH3V18 = CINIC(7)
    C2H6 = CINIC(8)
    CFOTON = CINIC(9)
    CH3V2 = CINIC(10)
    CH4 = CINIC(11)
C
C  CONTADOR DE PASES POR RUTINA
    NCFNS=NCFNS+1
C
C  NUMERO NORMALIZADO DE FOTONES DEL DESTELLO AL TIEMPO T
    PMST=BOMBEO(T)
C
C  BOMBEO A DIFERENTES LAMBDA
    DO 5 J=1,2
      ECL=EXT(J)*CH3I
C
C  SALTA SI 99% O MAS DE LOS FOTONES SON ABSORBIDOS
      IF (ECL.GT.2.00) GO TO 3
      BEER = 1.000-10.000**(-ECL)
      GO TO 4
3 BEER = 1.000
4 ABSCH(J)=FOT(J)*BEER*BAJST
5 CONTINUE
C
C  LAS V SON VELOCIDADES DE REACCION COMUNES A VARIAS ECUACIONES
C  V1 CORRESPONDE A I=1,2-K4-IF12
C  I=3 CH3I -K5- I E CH3I
C  I=4 CH3I -K1- I E CH3
C  I=5 GASIN-K21- I E GASIN
    VI = (CK(1)*CH3FIN + CK(4)*CI0002 + CK(5)*CH3I + CK(21)*GASIN)*
1 CIEXC

```

C V3 CORRESPONDE A  $1^{\circ}$  A CH3I -K3- 12 F CH3  
 $V3 = CK(3)*C1EXC*CH3I$

C V6 COR. A CH3 E 12 -K6- CH3I  
 $V6 = CK(6)*CH3FJN*CIODJ2$

C V7 ES LA RECOMBINACION DE METILO CH3 E CH3 -K7- C2H6  
 $V7 = CK(7)*CH2FJN*CH3FJN$

C V8 TIENE EN CUENTA LA FORMACION DE IODO A PARTIR DE CH2I  
 $CH2I$  E  $CH2I + C2H4$  E 12. TOMAMOS EL CH4 COMO MEDIDA DEL CH2I  
 $V8 = CK(8) * CH4 * CH4$

C V18 ES LA DESACTIVACION DE CH3T, CH3T&GASIN-K18-CH3&GASIN  
 $CH3T&CH3I -K19-CH3&CH3I$   
 $V18 = (CK(18)*GASIN+CK(19)*CH3I)*CH3TRA$

C V20 ES LA ABSTRACCION DE H POR CH3V, CH3V E CH3I -K20- CH4 F CH2  
 $V20 = CK(20)*CH3I*CH3VIB$

C V20A ES LA ABSTRACCION DE H POR CH3 CON POCA ENERGIA VIBRACIONAL  
 $V20A = CK(27)*CH3V2*CH3A$

C V22 CORRESPONDE A  $1^{\circ}$  A CH3VK -K22- 1 E CH3  
 $V22 = CK(22)*CIEXC*CH3VIB$

C V22A ES LA DESACTIVACION DE METILO VIBRACIONAL POCO EXCITADO  
 $V22A = CK(22)*CIEXC*CH3V2$

C V22B ES LA DESACTIVACION DE METILO TRSLACIONAL  
 $V22B = CK(22)*CIEXC*CH3TRA$

C V23 CORRESPONDE A LA DESCOMPOSICION DE CH3I PRODUCCION POR CH3V  
 $CH3VIB$  E  $CH3I - CH3V2$  E CH3 E 1  
 $V23 = CK(23)*CH3I*CH3VIB$

C V24 ES LA DESACTIVACION DE CH3VIB POR CH3I  
 $V24 = CK(24)*CH3I*CH3VIB$

C V24A ES LA DESACTIVACION DE CH3V2 POR CH3I  
 $V24A = CK(22)*CH3V2*CH3A$

C V26 COR. A CH3VIB&GASIN-K26-CH3FUNGASIN  
 $V26 = CK(26)*CH3VIB*GASIN$

C V26A ES LA DESACTIVACION DE CH3V2 POR GAS INERTE  
 $V26A = CK(30)*CH3V2*GASIN$

C V28 ES LA DESACTIVACION DE CH3VIB POR GAS INERTE A CH3V2  
 $V28 = CK(28)*CH3VIB*GASIN$

C V36 ES LA PRODUCCION DE CH4 A PARTIR DE CH3TRA Y CH3I  
 $V36 = CK(36)*CH3TRA*CH3I$

C V37 ES LA PRODUCCION DE C2H6 Y 1 A PARTIR DE CH3TRA Y CH3I  
 $V37 = CK(37)*CH3TRA*CH3I$

C V31 COR. A  $1^{\circ}$  E 1 E CH3I -K12- 12 E CH3I RECOMBINACION IODO  
 $1^{\circ}$  E 1 E 12 -K14- 12 E 12  
 $1^{\circ}$  E 1 E GASIN -K16- 12 F GASIN ATOMICO  
 $V31 = (CK(12)*CH3I+CK(14)*CIODJ2+CK(16)*GASIN)*CIFUN*CIFUN$

C V2 ES LA RECOMBINACION DE  $1^{\circ}$  Y CH3I A CH3I  
 $V2 = CK(12)*CIEXC*CH3FJN$

C V38 ES LA PRODUCCION DE CH3 A PARTIR DE CH3TRA Y CH3I  
 $V38 = CK(38)*CH3TRA*CH3I$

C EMISION ESTIMULADA O VELOCIDAD  $1^{\circ}$ -1 CEPIDJ A ESTA EMISION  
 $EMIEST = CEFTCN*(SECCN&GSI)*CIEXC$

C ABSORCION ESTIMULADA O VELOCIDAD  $1^{\circ}$ -1 DEBIDO A ESTA ABSORCION  
 $ABSEST = CEFTCN*(SECCN&GSI)*CIFUN$

C FORMULA ES LA FORMACION DE IODO EXCITADO J=1 O IODO FUNDAMEN  
 $TAL J=2$  A LA LONGITUD DE ONDA K  
 $DO 125 K=1,2$   
 $DO 125 J=1,2$

```

FOR1(K,J) = PCIENT(K,J)+ABSDE(K)
1125 CONTINUE
C      RECOMBINACION CH3E1 -> CH3
V25 = CK(25)*CHJFUN*CIJUN
C      IUDO EXCITACION 1*CONTAJUR
10 DEQ(1)=(ABSEST+FOR1(1,1)+FOR1(2,1) )- (V1+V3+V22+V22A+V22B+V2
1+EMIEST)
C      IUDO MOLECULAR
20 DEQ(2) = (V3 + V31 + V3 ) - V6
C      IUDO ATOMICO FUNDAMENTAL
30 DEQ(3) = (V1+V6+V22+V36 +V22B+V23+V37+EMIEST+FOR1(1,2)+FOR1(2,2))
1-(V31+2.00+V25+ABSEST)
C      IUDURC DE METILU
40 DEQ(4)=(V6+V25+V2)-(V3+V20+V20A+V23+ABSOR(1)+ABSOR(2)
1+V36+V37+V38)
C      RADICAL METILO TERMALIZADO
50 DEQ(5) = (V3+V18+V22B+V24+V24A+V26+V26A+V23+2.00-V36)
1-(V6+2.00+V7+V25+V2)
C      RADICAL METILO CON ENERGIA TRASLACIONAL
60 DEQ(6) = ABSOR(1) -(V1J+V22B+V36+V37+V38)
C      RADICAL METILO CON ENERGIA VIBRACIONAL
70 DEQ(7) = ABSOR(2) - (V2J+V26+V23+V24+V28)
C      ETANO
80 DEQ(8) = V7+V27
C      CIF=0.00
C      PEPC=0.00
C      EVITA EL CALCULO E INESTABILIDAD A TIEMPOS CORTOS
IF((CIEXC-0.5-CIFUN-LE-JETA+DEFSNSECC).AND.(CFOTON-LE-1.0-12)) GO
1124
C      DENSIDAD DE FOTONES IPRAD # BETA*CFOTONK
PERC = BETA*CFOTON
90 DIF = EMIEST-(ABSEST+PERC)
1124 DEQ(9)=DIF
C      METILO VIBRACIONAL POCO EXCITADO
DEQ(10) = V23+V28 - (V2JA+V24A+V26A)
C      METANO
DEQ(11)= V20A + V20 +V3J
RETURN
END

```

```

FUNCTION BONBEC(X)
  IMPLICIT REAL*8(A-H,O-L)
  COMMON/FLASH/XY(99,3),FACN(3),NDATOS,IVOLT
C   FACN ES EL FACTOR DE NORMALIZACION A LAS DIVERSAS ENERGIAS
C   NDATOS ES EL NUMERO DE PUNTOS DE LA CURVA
C   IVOLT SELECCIONA LOS VALORES CORRESPONDIENTES A LAS DISTINTAS
C   ENERGIAS DE DESCARGA, IVOLT#1 CORRESPONDE A E#538 J, IVOLT#2
C   CORRESPONDE A E#829 J, IVOLT#3 CORRESPONDE A E#1197 J
  DIMENSION D(10),T(10)
  NGRAD = 3
C   NGRAD ES EL GRADO DEL POLINOMIO DE INTERPOLACION
  J = IVOLT
  N = NGRAD + 1
  I1 = IDINT(X) + 1
  DO 1 I=1,N
    I2 = I1 - NGRAD + 1
    IF(I2.LE.0)GO TO 10
    IF(I2.GT.NDATOS)GO TO 20
    T(I) = CFLGAT(I2)
    D(I) = Y(I2,J)
  1 CONTINUE
  DO 2 K=1,NGRAD
    NKK = N - K
    DO 2 J=1,NKK
  2 C(I) = (D(I+1)-D(I))*T(I+K)-T(I)
    P = D(I)
    DO 3 K=2,N
  3 P = D(K) + (X - T(K))*P
    GO TO 30
  10 P = Y(I1,J) + X*(Y(I2,J) - Y(I1,J))
    GO TO 30
  20 P = Y(NDATOS,J)
  30 BONBEC = F*(FACN(J)
  RETURN
END

```

```

SUBROUTINE IFCUT(Y,DY,N,X,STYPE)
  IMPLICIT REAL*8(A-H,O-L)
  INTEGER*2 HORA(4)
  REAL*4 VCF01,VPINV,VCH0F,VCH31,VCH3V,VIO002,VTIEM
  DIMENSION Y(20),DY(20)
  LOGICAL STYPE,TITLE
  COMMON/ALKE/CC,DEGS,DESI,GASIN
  COMMON/CCTE/SPCK(50),EXT(5),FOT(5),FOIEM(5,2),FORI(5,2)
  COMMON/GBUSSN/BETA,TAX,CFNS,NEC
  COMMON/GRAFF/VCF01(300),VPINV(300),VCH0F(300),VCH31(300),VCH3V(300)
  11,VIO002(300),VTIEM(300),VC2H6(300),UPIN
  COMMON/CTPUT/SP,H,XI,XF,EPS,NP,TITLE
  COMMON/FUNCTION/ME,NPERF,NTPEF
  COMMON/SALT/CTIEM,USALTJ,INDICA
  COMMON/VELOR/V1,V3,V6,V7,V20,V22,V31,V32,EMILST,ABSEST,PERD

```

```

C EQUIVALENCIA ENTRE VECTOR Y Y LOS NUMBRES USADOS AQUI
CIEXC = Y(1)
C10002 = Y(2)
CIFUN = Y(3)
CH31 = Y(4)
CH3FUN = Y(5)
CH3TRA = Y(6)
CH3VIB = Y(7)
C2H6 = Y(8)
CFOTON = Y(9)
CH3V2 = Y(10)
CH4 = Y(11)
IF(.NOT.TITLE) GO TO 10
TITLE = .FALSE.
IF(NP.EQ.0) WRITE(6,601)
WRITE(6,602)
C NP ES UNA BANDERA QUE VALE 0 CUANDO NO SE ESPECIFICAN LOS PUNTOS
C Y 1 CUANDO SON ESPECIFICADOS
C STYPE ES UNA VARIABLE LOGICA QUE VALE .TRUE. CUANDO X ES UN PUNTO
C ESPECIFICADO, NO DESEAMOS IMPRIMIR OTROS PUNTOS
10 IF(NP.EQ.1) GO TO 20
C ESCRIBE PUNTOS NO ESPECIFICADOS
WRITE(6,603) X,(Y(I),I=1,N)
RETURN
C SI EL PUNTO ES NO ESPECIFICADO STYPE # FALSE Y VUELVE
20 IF(.NOT.STYPE) RETURN
C DESDE UN TIEMPO TIEM EL PROGRAMA IMPRIME CADA NSALTO
IF (X.GT.TIEM) INDICA=INDICA+1
IF (INDICA.GE.NSALTO.ON.X.LT.TIEM) GO TO 30
RETURN
30 INDICA=0
WRITE(6,604) X
WRITE(6,605) CIEXC,C10002,CIFUN,CH31,CH3FUN,CH3TRA
WRITE(6,606) CH3VIB,C2H6,CFOTON,CH3V2,CH4
C CALCULO INVERSION DE FUERZAS
PINVER = CIEXC-0.500*CIFUN
WRITE(6,607) PINVER,FOR1(1,1),FOR1(2,1),EMIEST,ABSEST,PERD
C PEMBED 13 ES FOR1(1,1) Y FOR1(2,1) LAS LONGITUDES LARGA Y CORTA RESP.
C VELOCIDADES DE REACCIONES ELEMENTALES REAC3*V3 Y REAC2*V2
REAC4=CK(4)*C10002*CIEXC
REAC5=CK(5)*CH31*CIEXC
REAC1=CK(1)*CH3FUN*CIEXC
WRITE(6,608)
WRITE(6,609) REAC1,V3,REAC4,REAC5,V2
NPUN = NPUN + 1
VCFCT(NPUN) = CFOTON
VPINV(NPUN) = PINVER
VCH3F(NPUN) = CH3FUN
VCH3T(NPUN) = CH3TRA
VCH3V(NPUN) = CH3VIB
VTIEM(NPUN) = X
VI0002(NPUN) = C10002
IF(NPERF.CT.0) GO TO 100
CALL FCFEA(FOR1)
CALL NUMER(HORA(1),1,2,NUM1,+1)
CALL NUMER(HORA(2),1,2,NUM2,+1)

```

```

C      NUMA TIEMPO EN MIN.
      NUMA = NUM1*60 + NUM2
C      ESCRIBE CONC. SI FASE EN TIEMPO EN MIN. NTPER (UNA SOLA VEZ)
      IF((NUMA-NUME).GT.NTPER) GO TO 59
      GO TO 100
99     WRITE(7,503)(Y(I),I=1,NLC)
      NPERF = 1
      GO TO 100
1      WRITE(6,1001)
1001  FORMAT (' ERROR EN LA CONVERSION DEL TIEMPO A BINARIO')
100   CONTINUE
503   FORMAT(5E15.8)
601   FORMAT(1H1,/,79X,'ESCRIBE LOS PUNTOS FLEJIDOS POR EL PROGRAMA',/,
128X,'LAS CONCENTRACIONES EN MOLES/LITRO, LOS TIEMPOS EN MICROSEGUNDOS',/)
602   FORMAT(1H1,/,5X,'ESCRIBE LOS PUNTOS ESPECIFICADOS POR DELTAT SEGUN
1 LA FORMULA TIEMPO = K*DELTAT SIENDO K=0,1,2...',/,28X,'LAS CONCEN
2 TRACIONES EN MOLES/LITRO, LOS TIEMPOS EN MICROSEGUNDOS',/)
603   FORMAT(1H0,10X,6(E15.8,5X)N,3(31X,5(E15.8,5X),N))
604   FORMAT(N,/,148,'TIEMPO=',F5.1,'MICROSEGUNDOS',/)
605   FORMAT(4X,'CIEXC=',E10.3,3X,'CIODC2=',E10.3,4X,'CIFUN=',E10.3,5X,
1 'CH31=',E10.3,3X,'CH3FON=',E10.3,3X,'CH3TRA=',E10.3)
606   FORMAT(3X,'CH3VIB=',E10.3,5X,'CH2H6=',E10.3,3X,'CFUTON=',E10.3,4X
1 ', 'CH3V2=',E10.3,3X,'CH4 ',E10.3)
607   FORMAT(N,2X,'INVERS.',E10.3,2X,'BOBFO 1= 1 Y 2',E10.3,2X,E10.3,
12X,'EMIST.',E10.3,2X,'ABSEST.',E10.3,3X,'PEPD1.',E10.3)
608   FORMAT(42X,'VELOCIDADES DE REACCIONES ELEMENTALES')
609   FORMAT(4X,'REAC1',E10.3,4X,'REAC3',E10.3,4X,'REAC4',E10.3,4X,
1 'REAC5',E10.3,3X,'REAC22',E10.3)
      RETURN
      END

```

```

SUBROUTINE CFAU
IMPLICIT REAL*8(A-H, J-Z)
REAL*4 C, PCF, MAS, CERD, BLANCO, MENUS
REAL*4 AXFO1, AXINV, AXCH1, AXCH2, AXCHV, AXI2, AMINV
REAL*4 VCFOT, VFINV, VCH3F, VCH3T, VCH3V, VIODD2, VTIEH
COMMON/CDTSRCK(30), EXI(5), FBT(5), PCIFN(5,2), FORI(5,2)
COMMON/CDLSSR BETA, TMA, CCENS, NIC
COMMON/CDHAFR VCFOT(300), VPI(300), VCH3F(300), VCH3T(300), VCH3V(300)
11, VIODD2(300), VTIEH(300), VC2HE(300), NPMH
COMMON/SALTENIEM, NSALT, INDICA
COMMON/VELOR V1, V3, V6, V7, V20, V22, V31, V32, EMIST, ABSEST, PEPD
DIMENSION C(120)
DATA PCF, MAS, CERD, BLANCO, MENUS/1H+, 1H0, 1H-, 1H-F

```

```

C      LEER A (DE CONSTANTES
      AXFOT=0.
      AXINV=0.
      AXCHF=0.
      AXCHT=0.
      AXCHV=0.
      AXI2=0.
      AMINV = 0.)I+10
C      HALLAR MAXIMOS DE LAS FUNCIONES Y MINIMOS SI TOMAN VALORES NEGATI.
      DO 10 I=1,NPUN
      IF (VCFOT(I).GT.AXFOT) AXFOT=VCFOT(I)
      IF (VPINV(I).GT.AXINV) AXINV=VPINV(I)
      IF (VCH3F(I).GT.AXCHF) AXCHF=VCH3F(I)
      IF (VCH3T(I).GT.AXCHT) AXCHT=VCH3T(I)
      IF (VCH3V(I).GT.AXCHV) AXCHV=VCH3V(I)
      IF (VIOCC2(I).GT.AXI2) AXI2=VIOCC2(I)
10    CONTINUE
C      TITULO PARA PRIMERA GRAFICA
      WRITE(6,620) AXFOT,AXINV,AXCHF
      WRITE(6,621) AMINV
6620  FORMAT (1H1, 6X, 'MAXIMO CFOTEN * ',E10.4,12X, 'MAXIMO INVERSION *
1    ',E10.4,12X, 'MAXIMO CH3FUN O ',E10.4)
6621  FORMAT (1H1, 'MINIMO INVERSION ',E10.1)
C      LINEA DE DELIMITACION
      DO 20 I=1,120
      C(I)='X'
20    CONTINUE
      WRITE(6,600)(C(I),I=1,120)
C      SE PONE EN BLANCO EN 30 Y SE MANTIENE ASI
      DO 30 I=1,120
30    C(I)=' '
C      REPRESENTA UN PUNTO DE LA CONCE. DE FOTONES *, DE LA INVERSION DE
C      POBLACION Y DE CH3FUN EL +1.5 ES PARA REDONDEAR LA TRUNCACION
C      EVITAR INDICES IGUALES A CERO
C      FOTONES Y TIEMPO
      DO 40 I=1,NPUN
      IND1=(VCFOT(I)*100.0/AXFOT) + 1.5
      C(IND1)= 'P'
      WRITE(6,601)(VTIEM(I),C(I),J=1,101)
      C(IND1)=BLANCO
C      INVERSION
      IND2 = ((VPINV(I)-AMINV)*100.0/AXINV-AMINV)<< 01.5
      LOS VALORES NEGATIVOS SE REPRESENTAN COMO CERO, SI NO LA
C      ESCALA SE COMPRIME DEMASIADO LA TARJETA ELIMINADA CON LA C
C      PERMITE REPRESENTAR FUNCIONES CON VALORES NEGATIVOS
      IND2 = (VPINV(I)-100.0/AXINV) + 1.5
      IF (IND2.LT.1) IND2=1
      C(IND2)= 'M'
      WRITE(6,602)(C(J),J=1,101)
      C(IND2)=BLANCO
C      METILO FUNDAMENTAL
      IND3=(VCH3F(I)*100.0/AXCHF) + 1.5
      C(IND3)= 'C'
      WRITE(6,603)(C(J),J=1,101)
      C(IND3)=BLANCO

```



```

40 CONTINUE
DO 35 J=1,120
35 C(J)= MENCS
WRITE(6,600)(C(J),J=1,120)
DO 36 J=1,120
36 C(J)= BLANCO
C NUEVA GRAFICA PARA REPRESENTAR CH3TRA,CH3VIB Y C10D02
C DELIMITACION Y PUESTA EN BLANCO
C TITULO PARA SEGUNDA GRAFICA
WRITE(6,620) AXCHT,AXCHV,AXI2
630 FORMAT(1H1, 6X,'MAXIMO CH3TRA = ',F10.4,12X,'MAXIMO CH3VIB + '
1,E10.4,12X,'MAXIMO C10D02 = ',F10.4)
DO 50 I=1,120
C(I)= MENCS
50 CONTINUE
WRITE(6,600)(C(K),K=1,120)
DO 60 K=1,120
60 C(K)= BLANCO
DO 70 I=1,NFUN
C METILO TRASLACIONAL
IND1 = (VCH2T(I)*100.0/AXCHT) + 1.5
C(IND1) = PCF
WRITE(6,601)(VITEM(I),(C(J),J=1,101)
C(IND1) = BLANCO
C METILO VIBRACIONAL
IND2 = (VCH2V(I)*100.0/AXCHV) + 1.5
C(IND2) = VAS
WRITE(6,602)(C(K),K=1,101)
C(IND2) = BLANCO
C IODO MOLECULAR O
IND3 = (VICD2(I)*100.0/AXI2) + 1.5
C(IND3) = CERD
WRITE(6,602)(C(J),J=1,101)
C(IND3) = BLANCO
70 CONTINUE
C LINEA DE LIMITACION
DO 80 I=1,120
80 C(I)= MENCS
WRITE(6,600)(C(I),I=1,120)
600 FORMAT(1H1,120A1)
601 FORMAT(1H1,F(6.1,2H, ,10A1,1H.)
602 FORMAT(1H1,EX,101A1)
RETURN
END

```

-313-

```

SUBROUTINE CE (XFX,N,Y,AI,XF,HI,EPS,ERR,XOUTX)
  IMPLICIT REAL*8(A-H,O-Z)
  EXTERNAL XFX,ERR,XOUTX
  COMMON/DESP(MN,NP,KOUNT)
  DIMENSION Y(20)
  NP=0
  SP=C.DO
  CALL XDE (SP,XFX,N,Y,AI,AF,HI,EPS,ERR,XOUTX)
  RETURN
END

```

```

SUBROUTINE CESP (SP,XFX,N,Y,XI,XF,HI,EPS,ERR,XOUTX)
  IMPLICIT REAL*8(A-H,O-Z)
  DIMENSION Y(20)
  EXTERNAL XFX,ERR,XOUTX
  COMMON/DESP(MN,NP,KOUNT)
  NP=1
  KOUNT=0
  IF(SP*(XF-XI)) 2,4,10
2 SP=DSIGN(SP,XF-XI)
  GO TO 10
4 IF(SP) 10,5,10
5 NP = 0
110 CALL XDE(SP,XFX,N,Y,XI,AF,HI,EPS,ERR,XOUTX)
  RETURN
END

```

```

SUBROUTINE XDE(SP,XFX,N,Y,XI,XF,HI,EPS,ERR,XOUTX)
  IMPLICIT REAL*8(A-H,O-Z)
  DIMENSION Y(20),DY(20),S(20),P(20),YP(20)
  COMMON/DESP(MN,NP,KOUNT)
  COMMON/FPAMPZGT,POWERL,EMAX,EMIN,FDIV,ZJTOP,ICHOP
  COMMON/IDPAR/MCN,NMAX
  COMMON/INFO XFX,ERR,EH,NE,NERK
  COMMON/CTPUT/SPRT,HIPRT,XIPRT,XFPRT,EPSPRT,NPPRT,TITLE
  LOGICAL STYPE,KUNVF,TITLE
  EQUIVALENCE (JP,H)

```

```

EXTERNAL XFX,ERR
ZCT=2.27374E-13
EMAX=1.E-2
EMIN=1.E-14
POWER2=131072.D0
C CAMBIADO POWER2 PARA QUE NO SE CUMPLA PRIMERA PARTE DE SENTENCIA12
HDIV=1048576.D0
C AUMENTADO HDIV PARA PERMITIR VALORES DE E-03 DE H INICIAL,
C VFP SENTENCIA 30 DEPRES.HMIN*XF-XI<KHDIV
ZOTUP=4.39805012
ICHOP= 4056
M=6
NMAX=20
TITLE=.TRUE.
STYPE=.TRUE.
NPPRT=NP
SPPRT=SP
FIPRT=HI
XIPRT=XI
XFRT=XF
EPSRT=EPS
IF ((N.LE.0).OR.(N.GT.NMAX))GO TO 84
IF ((EPS.LT.EMIN).OR.(EPS.GT.EMAX))GO TO 85
TTL=XF-XI
H=HI
IF (TTL>H)86,87,12
12 IF(((H-TTL)*POWER2.LT.1.D0).OR.((H-TTL).GT.1.D0)) GO TO 88
DO 14 I=1,N
S(I)=DABS(Y(I))
14 CONTINUE
KCNVF=.TRUE.
HMIN=HFDIV
HMAX=H*50.D0
C DISMINUIR HMAX.EL VALOR ANTIGUO ERA 30 MICROSEGUNDOS
HP=0.D0
XP=XI
X=XI
20 F=H*3.C
F=3.0**F
IF ((NP.EQ.0).AND.(.NOT.STYPE))GO TO 50
XPMX=XP-X
FH=XPMXKH
IF (FH.GT.701)GO TO 50
30 IF(DABS(FH).GT.201) GO TO 34
DO 32 I=1,N
Y(I)=Y(I)
32 CONTINUE
FC=HP
XF=X
GO TO 36
34 HC=XPMX+HP
FR=FQ
XR=XT

```

```

      CALL DEFIF(N,XR,YR,DY,M,H,EPS,M,S,R,KONVF,XFX,ERR)
      HQ=XR-XT
836 CALL XFX(YR,XR,DY)
      STYPE=.TRUE.
      CALL XOUTX(YR,DY,N,XR,STYPE)
      STYPE=.FALSE.
      IF(KONVF) GO TO 40
C AMRADICA EN DOBLE PRECISION
838 IF(KONVF) GO TO 70
      GO TO 82
440 IF((XR-XR)RTTL.LE.0.D0) GO TO 70
      KCUNT=KCUNT+1
      XP=XI+FLGAT(KCUNT)*SP
      IF((XP-XF)GE.0.D0) AP=XP
      GO TO 20
550 IF((ABS((X-XF)/H)).LE.20) GO TO 60
      CALL XFX(Y,X,DY)
      CALL XOUTX(Y,DY,N,X,STYPE)
660 IF((XF-X)RTTL.LE.0.D0) GO TO 70
      IF(DABS(H).LT.HMIN) H=DSIGN(HMIN,H)
      IF(DABS(H).GT.HMAX) H=DSIGN(HMAX,H)
      IF((XF-X-H)RTTL.LT.0.)H=XF-X
      XT=X
      CALL DESUE(N,X,Y,DY,H,HMIN,EPS,M,S,R,KONVF,XFX,ERR)
      HP=X-XT
      IF(KONVF) GO TO 20
      GO TO 80
770 RETURN
880 NEFF=1
      ER=C.D0
      DO 81 I=1,N
      IF (ER*S(I).GE.R(I)) GO TO 81
      ER=R(I)*S(I)
      NE=I
881 CONTINUE
      EH=HP
      EX=X
      CALL XFX(Y,X,DY)
      CALL XOUTX(Y,DY,N,X,STYPE)
      GO TO 52
882 NEFR=1
      ER=C.D0
      DO 82 I=1,N
      IF (ER*S(I).GE.R(I)) GO TO 83
      ER=R(I)*S(I)
      NE=I
883 CONTINUE
      EH=HQ
      EX=XP
      GO TO 52
884 NEFR=2
      GO TO 90
885 NEFR=3
      GO TO 90

```

```

86 NFFR=4
   GO TO 90
87 NFFR=5
   GO TO 90
88 NERR=6
90 CALL XFX(Y,XI,DY)
   CALL XOUTX(Y,DY,N,XI,STIPE)
92 CALL ERRCR
   RETURN
   END

```

```

SUBROUTINE CESUB(N,X,Y,DY,H,HMIN,EPS,JM,S,R,KONVF,FCT,ERR)
  IMPLICIT REAL*8(A-H,O-Z)
  DIMENSION Y(20),S(20),YA(20),DZ(20),SA(20)
  DIMENSION DY(20),R(20)
  COMMON/CEFE(MRYA,SA,DZ,JMAX)
  EXTERNAL FCT,ERR
  JMAX=JM+4
  DO 100 I=1,N
    YA(I)=Y(I)
    SA(I)=S(I)
100 CONTINUE
    CALL FCT(Y,X,DZ)
    CALL DEFSEIN(X,Y,DY,H,HMIN,EPS,JM,S,R,KONVF,FCT,ERR)
    RETURN
  END

```

```

SUBROUTINE REDIFIN(X,Y,DY,H,HMIN,EPS,JM,S,R,KONVF,FCT,ERR)
  IMPLICIT REAL*8(A-H,O-Z)
  DIMENSION Y(20),YA(20),SA(20),DZ(20)
  DIMENSION DY(20),R(20),S(20)
  COMMON/CEFE(MRYA,SA,DZ,JMAX)
  EXTERNAL FCT,ERR
  DO 300 I=1,N
    Y(I)=YA(I)
300 CONTINUE
    CALL DEFESBIN(X,Y,DY,H,HMIN,EPS,JM,S,R,KONVF,FCT,ERR)
    RETURN
  END

```

```

SUBROUTINE DEPRESB(J,X,Y,DY,H,HMIN,EFS,JM,S,F,KONV,FCT,E4)
IMPLICIT REAL*8(A-H,I-Z)
DIMENSION Y(20),DY(20),S(20),R(20),YA(20),YL(20),YM(20),DZ(20),
1 SA(20),C(7),DT(20,7),Z(20,8),YH(20,8),SG(20,8)
COMMON/DEPRESB/SA,DZ,JMAX
COMMON/DEPRESB/P2,EMAX,EMIN,HDIV,ZOTUP,ICHOP
LOGICAL KONVF,KONV,BD,BH
10 BH=.FALSE.
KONVF=.TRUE.
20 A=H+X
BD=.FALSE.
M=1
JR=2
JS=3
JJ=0
DO 200 J=1,JMAX
IF(.NOT.BD)GO TO 201
C(2)=16.DC45.D0
C(4)=64.DC45.D0
C(6)=256.DC45.D0
GO TO 202
2201 C(2)=9.DC45.D0
C(4)=9.D0
C(6)=26.D0
2202 KONV=.TRUE.
IF(J.LE.(JM+2))KONV=.FALSE.
IF(J.LE.(JM+1))GO TO 203
L=JM+1
C(L)=4.DC45.D0*(L-2)
FC=FC+C.7C71C68JD
GO TO 204
2203 L=J
C(L)=FCAT(M*M)
FC=1.D0+FCAT(JM+1-J)R5.D0
2204 M=M+M
G=H*FCAT(M)
B=G+G
IF((.NOT.BH).OR.(J.GE.(JMAX-1)))GO TO 205
DO 210 I=1,N
YM(I)=YF(I,J)
YL(I)=YG(I,J)
S(I)=SG(I,J)
2210 CONTINUE
GO TO 206
2205 DO 2201=1,N
YL(I)=YA(I)
YM(I)=YA(I)+G*DZ(I)
S(I)=SA(I)
2220 CONTINUE
KH=M*2
XII=X
DO 230K=2,M
XII=XII+G
CALLFCT(YM,XII,DY)

```

```

      DO 231 I=1,N
      U=YU(I)+P*DY(I)
      YU(I)=YU(I)
      U=DABS(U)
C      INVERTIR EL ORDEN DE LAS TARJETAS
      YU(I)=U
      IF(U.GT.S(I))S(I)=U
231  CONTINUE
      IF((K.NE.KF).OR.(K.EQ.5))GO 10230
      JJ=1+JJ
      DO 232 I=1,N
      YU(I,JJ)=YU(I)
      YG(I,JJ)=YU(I)
      SG(I,JJ)=S(I)
232  CONTINUE
230  CONTINUE
206  CALL FCT(YU,A,DY)
      DO 240 I=1,N
      V=DT(I,1)
      DT(I,1)=(YU(I)+YU(I)+G*DY(I))*0.5DC
      C=DT(I,1)
      TA=C
      IF(I.LT.2)CC TO 242
      IF((DABS(V)*ZCTJP)-DABS(C)) 80,10CC,1000
      80  IF( H-HMIN) 9C,1000,9C
      90  IF(J.GT.JM92+1) GO TO 50
1000  DO 241 K=2,L
      B1=C(K)*V
      B=B1-C
      U=V
      IF (B) 15,243,15
      15  B=(C-V)/B
      U=C*B
      C=B1*B
243  V=DT(I,K)
      DT(I,K)=U
      TA=U+TA
241  CONTINUE
242  CALL FERR(TA,Y(I),S(I),R(I),EPS,KCONV)
240  CONTINUE
      IF(KONV)CC TO 40
      C(3)=4.00
      C(5)=16.000
      EC=(.ACT.FD)
      M=JP
      JS=JS
      JS=M+M
200  CONTINUE
      EH=(.ACT.BF)
      30  IF(DABS(H).LE.HMIN) GO TO 50
      H=HR2.D0
      IF(DABS(H).GE.HMIN) GO TO 20
      H=DSIGN(HMIN,H)
      GO TO 10

```

```

500 KCONV=.FALSE.
400 F=FC*H
    X=A
    RETURN
END

```

-319-

```

SUBROUTINE ERROR
IMPLICIT REAL*8(A-H,O-Z)
COMMON INFOEX,ER,EH,AE,NERR
GO TO (10,20,30,40,50,60),NERR
100 WRITE(6,51) (X,EH,ER,NE
911 FORMAT(1H0,'***',5X,'N CONVERGENCIA EN EL PASO A X = ',E12.5,
1'CON F = ',E12.5, 6A,'***',A10X,'EL ERROR LIMITE ES',E12.5,
2'EN LA ECUACION',12,A)
    RETURN
200 WRITE(6,52)
922 FORMAT(1H0,'***',5X,'N MENOR QUE 0 O MAYOR QUE 20',5X,'***')
    RETURN
300 WRITE(6,53)
933 FORMAT(1H0,'***',5X,'N MENOR QUE 1E-7 O MAYOR QUE 1E-2',
15X,'***')
    RETURN
400 WRITE(6,54)
944 FORMAT(1H0,'***',5X,'N T FINAL - T INICIAL MENOR QUE 0',
15X,'***')
    RETURN
500 WRITE(6,55)
955 FORMAT(1H0,'***',5X,'N D O T FINAL + T INICIAL',5X,'***')
    RETURN
600 WRITE(6,56)
966 FORMAT(1H0,'***',5X,'N MENOR QUE T FINAL - T INICIAL < 2**15
10 H MAYOR QUE T FINAL - E INICIAL <',5X,'***')
    RETURN
END

```

```

SUBROUTINE SEITA,Y,S,K,EPS,KONV)
IMPLICIT REAL*8(A-H,O-Z)
S=CAHS(Y)
CALL ERRITA,Y,S,R,EPS,KONV)
RETURN
END

```



```

SUBROUTINE ERRTA,Y,S,I,EPS,KCNV)
IMPLICIT REAL*8(A-H,O-Z)
LOGICAL KCNV
R=CABS(Y-TA)
Y=TA
IF(S.LT.EPS)S=EPS
IF(R.GT.EPS+S)KCNV=.FALSE.
RETURN
END

```

```

BLOCK DATA
IMPLICIT REAL*8(A-H,O-Z)
COMMON/ELASH/Y(99,3),FACN(3),NDATOS,IVOLT
DATA Y(1,1), Y(2,1), Y(3,1), Y(4,1), Y(5,1), Y(6,1), Y(7,1),
1Y(8,1), Y(9,1), Y(10,1), Y(11,1), Y(12,1), Y(13,1), Y(14,1),
2Y(15,1), Y(16,1), Y(17,1), Y(18,1), Y(19,1), Y(20,1), Y(21,1),
3Y(22,1), Y(23,1), Y(24,1), Y(25,1), Y(26,1), Y(27,1), Y(28,1),
4Y(29,1), Y(30,1), Y(31,1) 0.0,8.0,19.2,29.6,41.6,49.6,56.0,600.0,
5 64.0,63.2,57.6,47.2,33.2,24.0,17.6,10.3,9.6,6.4,6.4,6.4,9.6,
6 8.8,12.8,12.8,9.6,8.8,8.4,6.4,6.4,6.4,4.8
DATA Y(1,2), Y(2,2), Y(3,2), Y(4,2), Y(5,2), Y(6,2), Y(7,2),
1 Y(8,2), Y(9,2), Y(10,2), Y(11,2), Y(12,2), Y(13,2), Y(14,2),
2 Y(15,2), Y(16,2), Y(17,2), Y(18,2), Y(19,2), Y(20,2), Y(21,2),
3 Y(22,2), Y(23,2), Y(24,2), Y(25,2), Y(26,2), Y(27,2), Y(28,2),
4 Y(29,2), Y(30,2), Y(31,2) 0.0,16.0,32.0,48.0,60.6,75.8,89.3,
5 100.6,106.6,104.8,97.5,80.8,60.8,42.4,30.4,20.8,16.0,16.0,17.6,
6 21.6,25.6,28.8,28.8,25.6,24.8,20.5,18.6,12.8,9.6,9.6
DATA Y(1,3), Y(2,3), Y(3,3), Y(4,3), Y(5,3), Y(6,3), Y(7,3),
1 Y(8,3), Y(9,3), Y(10,3), Y(11,3), Y(12,3), Y(13,3), Y(14,3),
2 Y(15,3), Y(16,3), Y(17,3), Y(18,3), Y(19,3), Y(20,3), Y(21,3),
3 Y(22,3), Y(23,3), Y(24,3), Y(25,3), Y(26,3), Y(27,3), Y(28,3),
4 Y(29,3), Y(30,3), Y(31,3) 0.0,15.3,36.3,54.4,70.4,84.0,102.4,
5 116.0,124.8,120.8,110.4,88.0,67.2,47.2,32.0,24.0,19.2,20.0,24.0,
6 30.4,35.2,39.2,41.6,44.6,38.4,33.6,24.2,20.8,16.0,12.8,12.8
DATA FACN(1),FACN(2),FACN(3),NDATOS 738.0,1354.0,1643.0,30
END

```

PARAMETROS DE LA INTEGRACION  
PARAMETROS DE LA INTEGRACION

ALUMEN DE EQUACIONES TOLERANCIA DE ERROR PASO INICIAL DE INTEGRACION TIEMPO INICIAL Y FINAL TIEMPO IMPRESION  
REC=11 EPS= 0.10000-07 M= 0.10000-02 T0= 0.0 TFIN= 0.10000 02 DELTAT= 0.10000 00  
A PARTIR DE 20.0MICRONSER. INICIAL LA LAY 3 PUNTOS A LOS 40 MINUTOS DE CALCULO PERFORMA CONCENT.

ENERGIA DE DESARROLLO 538 J

CONSTANTES DE VELOCIDAD SEG-1

K 1= 0.1000 10K 2= 0.1500 11K 3= 0.2000 12K 4= 0.2500 13K 5= 0.3000 14K 6= 0.3500 15K 7= 0.4000 16K 8= 0.4500 17K 9= 0.5000 18K 10= 0.5500 19K 11= 0.6000 20K 12= 0.6500 21K 13= 0.7000 22K 14= 0.7500 23K 15= 0.8000 24K 16= 0.8500 25K 17= 0.9000 26K 18= 0.9500 27K 19= 1.0000 28K 20= 1.0500 29K 21= 1.1000 30K 22= 1.1500 31K 23= 1.2000 32K 24= 1.2500 33K 25= 1.3000 34K 26= 1.3500 35K 27= 1.4000 36K 28= 1.4500 37K 29= 1.5000 38K 30= 1.5500 39K 31= 1.6000 40K 32= 1.6500 41K 33= 1.7000 42K 34= 1.7500 43K 35= 1.8000 44K 36= 1.8500 45K 37= 1.9000 46K 38= 1.9500 47K 39= 2.0000 48K 40= 2.0500 49K 41= 2.1000 50K 42= 2.1500 51K 43= 2.2000 52K 44= 2.2500 53K 45= 2.3000 54K 46= 2.3500 55K 47= 2.4000 56K 48= 2.4500 57K 49= 2.5000 58K 50= 2.5500 59K 51= 2.6000 60K 52= 2.6500 61K 53= 2.7000 62K 54= 2.7500 63K 55= 2.8000 64K 56= 2.8500 65K 57= 2.9000 66K 58= 2.9500 67K 59= 3.0000 68K 60= 3.0500 69K 61= 3.1000 70K 62= 3.1500 71K 63= 3.2000 72K 64= 3.2500 73K 65= 3.3000 74K 66= 3.3500 75K 67= 3.4000 76K 68= 3.4500 77K 69= 3.5000 78K 70= 3.5500 79K 71= 3.6000 80K 72= 3.6500 81K 73= 3.7000 82K 74= 3.7500 83K 75= 3.8000 84K 76= 3.8500 85K 77= 3.9000 86K 78= 3.9500 87K 79= 4.0000 88K 80= 4.0500 89K 81= 4.1000 90K 82= 4.1500 91K 83= 4.2000 92K 84= 4.2500 93K 85= 4.3000 94K 86= 4.3500 95K 87= 4.4000 96K 88= 4.4500 97K 89= 4.5000 98K 90= 4.5500 99K 91= 4.6000 100K 92= 4.6500 101K 93= 4.7000 102K 94= 4.7500 103K 95= 4.8000 104K 96= 4.8500 105K 97= 4.9000 106K 98= 4.9500 107K 99= 5.0000 108K 100= 5.0500 109K 101= 5.1000 110K 102= 5.1500 111K 103= 5.2000 112K 104= 5.2500 113K 105= 5.3000 114K 106= 5.3500 115K 107= 5.4000 116K 108= 5.4500 117K 109= 5.5000 118K 110= 5.5500 119K 111= 5.6000 120K 112= 5.6500 121K 113= 5.7000 122K 114= 5.7500 123K 115= 5.8000 124K 116= 5.8500 125K 117= 5.9000 126K 118= 5.9500 127K 119= 6.0000 128K 120= 6.0500 129K 121= 6.1000 130K 122= 6.1500 131K 123= 6.2000 132K 124= 6.2500 133K 125= 6.3000 134K 126= 6.3500 135K 127= 6.4000 136K 128= 6.4500 137K 129= 6.5000 138K 130= 6.5500 139K 131= 6.6000 140K 132= 6.6500 141K 133= 6.7000 142K 134= 6.7500 143K 135= 6.8000 144K 136= 6.8500 145K 137= 6.9000 146K 138= 6.9500 147K 139= 7.0000 148K 140= 7.0500 149K 141= 7.1000 150K 142= 7.1500 151K 143= 7.2000 152K 144= 7.2500 153K 145= 7.3000 154K 146= 7.3500 155K 147= 7.4000 156K 148= 7.4500 157K 149= 7.5000 158K 150= 7.5500 159K 151= 7.6000 160K 152= 7.6500 161K 153= 7.7000 162K 154= 7.7500 163K 155= 7.8000 164K 156= 7.8500 165K 157= 7.9000 166K 158= 7.9500 167K 159= 8.0000 168K 160= 8.0500 169K 161= 8.1000 170K 162= 8.1500 171K 163= 8.2000 172K 164= 8.2500 173K 165= 8.3000 174K 166= 8.3500 175K 167= 8.4000 176K 168= 8.4500 177K 169= 8.5000 178K 170= 8.5500 179K 171= 8.6000 180K 172= 8.6500 181K 173= 8.7000 182K 174= 8.7500 183K 175= 8.8000 184K 176= 8.8500 185K 177= 8.9000 186K 178= 8.9500 187K 179= 9.0000 188K 180= 9.0500 189K 181= 9.1000 190K 182= 9.1500 191K 183= 9.2000 192K 184= 9.2500 193K 185= 9.3000 194K 186= 9.3500 195K 187= 9.4000 196K 188= 9.4500 197K 189= 9.5000 198K 190= 9.5500 199K 191= 9.6000 200K 192= 9.6500 201K 193= 9.7000 202K 194= 9.7500 203K 195= 9.8000 204K 196= 9.8500 205K 197= 9.9000 206K 198= 9.9500 207K 199= 10.0000 208K 200= 10.0500 209K 201= 10.1000 210K 202= 10.1500 211K 203= 10.2000 212K 204= 10.2500 213K 205= 10.3000 214K 206= 10.3500 215K 207= 10.4000 216K 208= 10.4500 217K 209= 10.5000 218K 210= 10.5500 219K 211= 10.6000 220K 212= 10.6500 221K 213= 10.7000 222K 214= 10.7500 223K 215= 10.8000 224K 216= 10.8500 225K 217= 10.9000 226K 218= 10.9500 227K 219= 11.0000 228K 220= 11.0500 229K 221= 11.1000 230K 222= 11.1500 231K 223= 11.2000 232K 224= 11.2500 233K 225= 11.3000 234K 226= 11.3500 235K 227= 11.4000 236K 228= 11.4500 237K 229= 11.5000 238K 230= 11.5500 239K 231= 11.6000 240K 232= 11.6500 241K 233= 11.7000 242K 234= 11.7500 243K 235= 11.8000 244K 236= 11.8500 245K 237= 11.9000 246K 238= 11.9500 247K 239= 12.0000 248K 240= 12.0500 249K 241= 12.1000 250K 242= 12.1500 251K 243= 12.2000 252K 244= 12.2500 253K 245= 12.3000 254K 246= 12.3500 255K 247= 12.4000 256K 248= 12.4500 257K 249= 12.5000 258K 250= 12.5500 259K 251= 12.6000 260K 252= 12.6500 261K 253= 12.7000 262K 254= 12.7500 263K 255= 12.8000 264K 256= 12.8500 265K 257= 12.9000 266K 258= 12.9500 267K 259= 13.0000 268K 260= 13.0500 269K 261= 13.1000 270K 262= 13.1500 271K 263= 13.2000 272K 264= 13.2500 273K 265= 13.3000 274K 266= 13.3500 275K 267= 13.4000 276K 268= 13.4500 277K 269= 13.5000 278K 270= 13.5500 279K 271= 13.6000 280K 272= 13.6500 281K 273= 13.7000 282K 274= 13.7500 283K 275= 13.8000 284K 276= 13.8500 285K 277= 13.9000 286K 278= 13.9500 287K 279= 14.0000 288K 280= 14.0500 289K 281= 14.1000 290K 282= 14.1500 291K 283= 14.2000 292K 284= 14.2500 293K 285= 14.3000 294K 286= 14.3500 295K 287= 14.4000 296K 288= 14.4500 297K 289= 14.5000 298K 290= 14.5500 299K 291= 14.6000 300K 292= 14.6500 301K 293= 14.7000 302K 294= 14.7500 303K 295= 14.8000 304K 296= 14.8500 305K 297= 14.9000 306K 298= 14.9500 307K 299= 15.0000 308K 300= 15.0500 309K 301= 15.1000 310K 302= 15.1500 311K 303= 15.2000 312K 304= 15.2500 313K 305= 15.3000 314K 306= 15.3500 315K 307= 15.4000 316K 308= 15.4500 317K 309= 15.5000 318K 310= 15.5500 319K 311= 15.6000 320K 312= 15.6500 321K 313= 15.7000 322K 314= 15.7500 323K 315= 15.8000 324K 316= 15.8500 325K 317= 15.9000 326K 318= 15.9500 327K 319= 16.0000 328K 320= 16.0500 329K 321= 16.1000 330K 322= 16.1500 331K 323= 16.2000 332K 324= 16.2500 333K 325= 16.3000 334K 326= 16.3500 335K 327= 16.4000 336K 328= 16.4500 337K 329= 16.5000 338K 330= 16.5500 339K 331= 16.6000 340K 332= 16.6500 341K 333= 16.7000 342K 334= 16.7500 343K 335= 16.8000 344K 336= 16.8500 345K 337= 16.9000 346K 338= 16.9500 347K 339= 17.0000 348K 340= 17.0500 349K 341= 17.1000 350K 342= 17.1500 351K 343= 17.2000 352K 344= 17.2500 353K 345= 17.3000 354K 346= 17.3500 355K 347= 17.4000 356K 348= 17.4500 357K 349= 17.5000 358K 350= 17.5500 359K 351= 17.6000 360K 352= 17.6500 361K 353= 17.7000 362K 354= 17.7500 363K 355= 17.8000 364K 356= 17.8500 365K 357= 17.9000 366K 358= 17.9500 367K 359= 18.0000 368K 360= 18.0500 369K 361= 18.1000 370K 362= 18.1500 371K 363= 18.2000 372K 364= 18.2500 373K 365= 18.3000 374K 366= 18.3500 375K 367= 18.4000 376K 368= 18.4500 377K 369= 18.5000 378K 370= 18.5500 379K 371= 18.6000 380K 372= 18.6500 381K 373= 18.7000 382K 374= 18.7500 383K 375= 18.8000 384K 376= 18.8500 385K 377= 18.9000 386K 378= 18.9500 387K 379= 19.0000 388K 380= 19.0500 389K 381= 19.1000 390K 382= 19.1500 391K 383= 19.2000 392K 384= 19.2500 393K 385= 19.3000 394K 386= 19.3500 395K 387= 19.4000 396K 388= 19.4500 397K 389= 19.5000 398K 390= 19.5500 399K 391= 19.6000 400K 392= 19.6500 401K 393= 19.7000 402K 394= 19.7500 403K 395= 19.8000 404K 396= 19.8500 405K 397= 19.9000 406K 398= 19.9500 407K 399= 20.0000 408K 400= 20.0500 409K 401= 20.1000 410K 402= 20.1500 411K 403= 20.2000 412K 404= 20.2500 413K 405= 20.3000 414K 406= 20.3500 415K 407= 20.4000 416K 408= 20.4500 417K 409= 20.5000 418K 410= 20.5500 419K 411= 20.6000 420K 412= 20.6500 421K 413= 20.7000 422K 414= 20.7500 423K 415= 20.8000 424K 416= 20.8500 425K 417= 20.9000 426K 418= 20.9500 427K 419= 21.0000 428K 420= 21.0500 429K 421= 21.1000 430K 422= 21.1500 431K 423= 21.2000 432K 424= 21.2500 433K 425= 21.3000 434K 426= 21.3500 435K 427= 21.4000 436K 428= 21.4500 437K 429= 21.5000 438K 430= 21.5500 439K 431= 21.6000 440K 432= 21.6500 441K 433= 21.7000 442K 434= 21.7500 443K 435= 21.8000 444K 436= 21.8500 445K 437= 21.9000 446K 438= 21.9500 447K 439= 22.0000 448K 440= 22.0500 449K 441= 22.1000 450K 442= 22.1500 451K 443= 22.2000 452K 444= 22.2500 453K 445= 22.3000 454K 446= 22.3500 455K 447= 22.4000 456K 448= 22.4500 457K 449= 22.5000 458K 450= 22.5500 459K 451= 22.6000 460K 452= 22.6500 461K 453= 22.7000 462K 454= 22.7500 463K 455= 22.8000 464K 456= 22.8500 465K 457= 22.9000 466K 458= 22.9500 467K 459= 23.0000 468K 460= 23.0500 469K 461= 23.1000 470K 462= 23.1500 471K 463= 23.2000 472K 464= 23.2500 473K 465= 23.3000 474K 466= 23.3500 475K 467= 23.4000 476K 468= 23.4500 477K 469= 23.5000 478K 470= 23.5500 479K 471= 23.6000 480K 472= 23.6500 481K 473= 23.7000 482K 474= 23.7500 483K 475= 23.8000 484K 476= 23.8500 485K 477= 23.9000 486K 478= 23.9500 487K 479= 24.0000 488K 480= 24.0500 489K 481= 24.1000 490K 482= 24.1500 491K 483= 24.2000 492K 484= 24.2500 493K 485= 24.3000 494K 486= 24.3500 495K 487= 24.4000 496K 488= 24.4500 497K 489= 24.5000 498K 490= 24.5500 499K 491= 24.6000 500K 492= 24.6500 501K 493= 24.7000 502K 494= 24.7500 503K 495= 24.8000 504K 496= 24.8500 505K 497= 24.9000 506K 498= 24.9500 507K 499= 25.0000 508K 500= 25.0500 509K 501= 25.1000 510K 502= 25.1500 511K 503= 25.2000 512K 504= 25.2500 513K 505= 25.3000 514K 506= 25.3500 515K 507= 25.4000 516K 508= 25.4500 517K 509= 25.5000 518K 510= 25.5500 519K 511= 25.6000 520K 512= 25.6500 521K 513= 25.7000 522K 514= 25.7500 523K 515= 25.8000 524K 516= 25.8500 525K 517= 25.9000 526K 518= 25.9500 527K 519= 26.0000 528K 520= 26.0500 529K 521= 26.1000 530K 522= 26.1500 531K 523= 26.2000 532K 524= 26.2500 533K 525= 26.3000 534K 526= 26.3500 535K 527= 26.4000 536K 528= 26.4500 537K 529= 26.5000 538K 530= 26.5500 539K 531= 26.6000 540K 532= 26.6500 541K 533= 26.7000 542K 534= 26.7500 543K 535= 26.8000 544K 536= 26.8500 545K 537= 26.9000 546K 538= 26.9500 547K 539= 27.0000 548K 540= 27.0500 549K 541= 27.1000 550K 542= 27.1500 551K 543= 27.2000 552K 544= 27.2500 553K 545= 27.3000 554K 546= 27.3500 555K 547= 27.4000 556K 548= 27.4500 557K 549= 27.5000 558K 550= 27.5500 559K 551= 27.6000 560K 552= 27.6500 561K 553= 27.7000 562K 554= 27.7500 563K 555= 27.8000 564K 556= 27.8500 565K 557= 27.9000 566K 558= 27.9500 567K 559= 28.0000 568K 560= 28.0500 569K 561= 28.1000 570K 562= 28.1500 571K 563= 28.2000 572K 564= 28.2500 573K 565= 28.3000 574K 566= 28.3500 575K 567= 28.4000 576K 568= 28.4500 577K 569= 28.5000 578K 570= 28.5500 579K 571= 28.6000 580K 572= 28.6500 581K 573= 28.7000 582K 574= 28.7500 583K 575= 28.8000 584K 576= 28.8500 585K 577= 28.9000 586K 578= 28.9500 587K 579= 29.0000 588K 580= 29.0500 589K 581= 29.1000 590K 582= 29.1500 591K 583= 29.2000 592K 584= 29.2500 593K 585= 29.3000 594K 586= 29.3500 595K 587= 29.4000 596K 588= 29.4500 597K 589= 29.5000 598K 590= 29.5500 599K 591= 29.6000 600K 592= 29.6500 601K 593= 29.7000 602K 594= 29.7500 603K 595= 29.8000 604K 596= 29.8500 605K 597= 29.9000 606K 598= 29.9500 607K 599= 30.0000 608K 600= 30.0500 609K 601= 30.1000 610K 602= 30.1500 611K 603= 30.2000 612K 604= 30.2500 613K 605= 30.3000 614K 606= 30.3500 615K 607= 30.4000 616K 608= 30.4500 617K 609= 30.5000 618K 610= 30.5500 619K 611= 30.6000 620K 612= 30.6500 621K 613= 30.7000 622K 614= 30.7500 623K 615= 30.8000 624K 616= 30.8500 625K 617= 30.9000 626K 618= 30.9500 627K 619= 31.0000 628K 620= 31.0500 629K 621= 31.1000 630K 622= 31.1500 631K 623= 31.2000 632K 624= 31.2500 633K 625= 31.3000 634K 626= 31.3500 635K 627= 31.4000 636K 628= 31.4500 637K 629= 31.5000 638K 630= 31.5500 639K 631= 31.6000 640K 632= 31.6500 641K 633= 31.7000 642K 634= 31.7500 643K 635= 31.8000 644K 636= 31.8500 645K 637= 31.9000 646K 638= 31.9500 647K 639= 32.0000 648K 640= 32.0500 649K 641= 32.1000 650K 642= 32.1500 651K 643= 32.2000 652K 644= 32.2500 653K 645= 32.3000 654K 646= 32.3500 655K 647= 32.4000 656K 648= 32.4500 657K 649= 32.5000 658K 650= 32.5500 659K 651= 32.6000 660K 652= 32.6500 661K 653= 32.7000 662K 654= 32.7500 663K 655= 32.8000 664K 656= 32.8500 665K 657= 32.9000 666K 658= 32.9500 667K 659= 33.0000 668K 660= 33.0500 669K 661= 33.1000 670K 662= 33.1500 671K 663= 33.2000 672K 664= 33.2500 673K 665= 33.3000 674K 666= 33.3500 675K 667= 33.4000 676K 668= 33.4500 677K 669= 33.5000 678K 670= 33.5500 679K 671= 33.6000 680K 672= 33.6500 681K 673= 33.7000 682K 674= 33.7500 683K 675= 33.8000 684K 676= 33.8500 685K 677= 33.9000 686K 678= 33.9500 687K 679= 34.0000 688K 680= 34.0500 689K 681= 34.1000 690K 682= 34.1500 691K 683= 34.2000 692K 684= 34.2500 693K 685= 34.3000 694K 686= 34.3500 695K 687= 34.4000 696K 688= 34.4500 697K 689= 34.5000 698K 690= 34.5500 699K

-322-

Salida de datos cada 0,1  $\mu$ s y hasta 30  $\mu$ s.

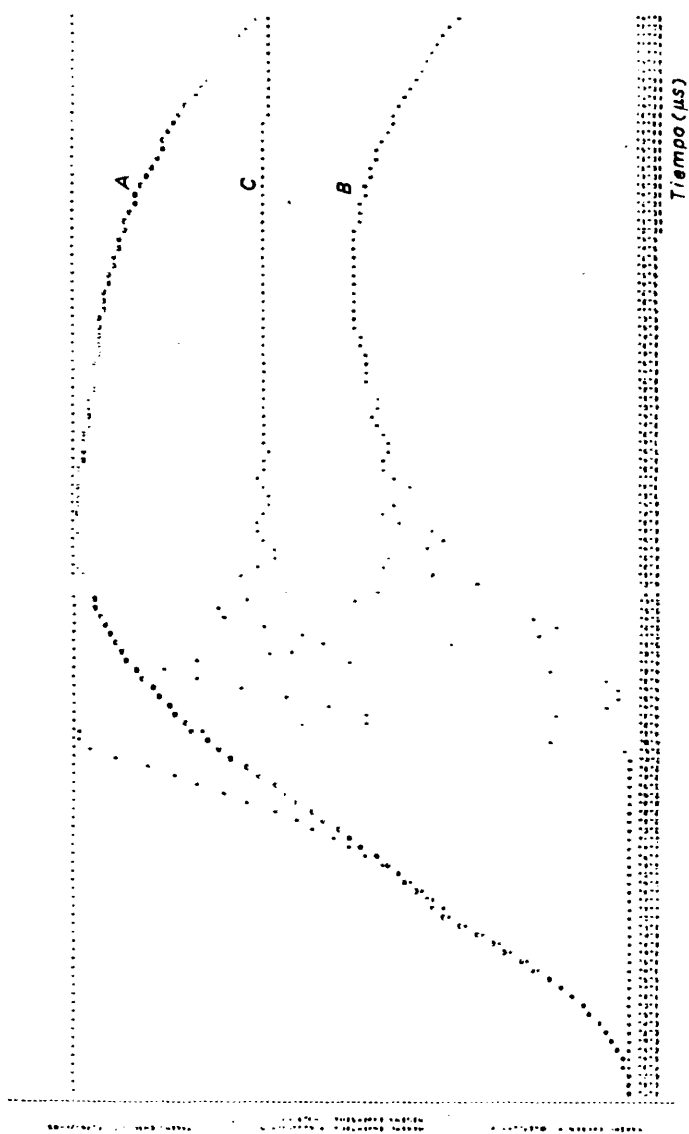


Gráfico de salida del programa. Presenta la variación con el tiempo de las concentraciones de  $CH_3$ : fundamental, curva A; fotones (efecto láser), curva B; inversión de población, curva C. Los puntos están espaciados  $0,1 \mu s$  y se imprimen hasta los  $30 \mu s$ .

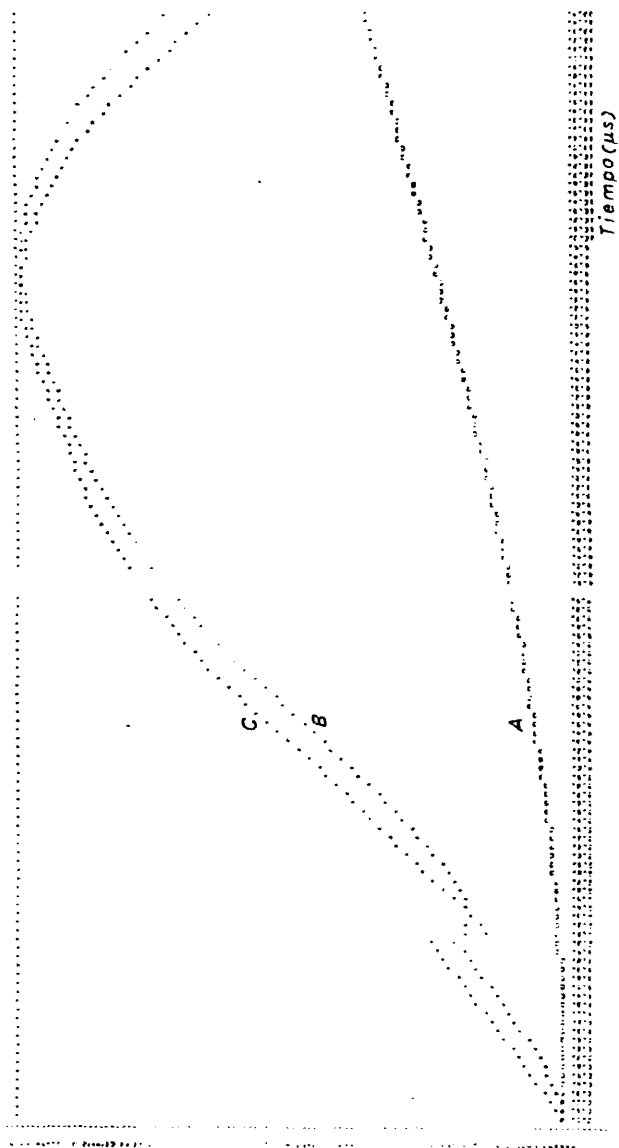


Gráfico de salida del programa. Presenta la variación con el tiempo de las concentraciones de:  $I_2$ , curva A;  $CH_3$  traslacionalmente excitado, curva B;  $CH_3$  vibracionalmente excitado, curva C. Los puntos están espaciados  $0,1 \mu s$  y se imprimen hasta los  $30 \mu s$ .

## VIII. BIBLIOGRAFIA

- [ 1 ] J.V.V.Kasper y G.C.Pimentel: Appl. Phys. Lett., 5, 231 (1964).
- [ 2 ] J.V.V. Kasper, J.H. Parker y G.C. Pimentel: J. Chem.Phys., 43, 1827 (1965).
- [ 3 ] M. Sargent III, M.O. Scully y W.E. Lamb Jr.: "Láser Physics", Addison-Wesley, Reading (Mass.), 1974.
- [ 4 ] Amnon Yariv: "Quantum Electronics", 2<sup>a</sup> edición, Wiley, New York, 1975.
- [ 4a ] Amnon Yariv: Ibid, pag. 179.
- [ 5 ] P.W. Smith, Proc. IEEE, 60, 422 (1972).
- [ 6 ] E.L. Steele: "Optical Lasers in Electronics", Wiley, New York, 1968.
- [ 7 ] Max Born y Emil Wolf: "Principles of Optics", 5<sup>a</sup> edición, Pergamon Press, Oxford, 1975.
- [ 7a ] Max Born y Emil Wolf: ibid, pág. 319.
- [ 7b ] Max Born y Emil Wolf: ibid, pág. 327.
- [ 7c ] Max Born y Emil Wolf: ibid, pág. 43.
- [ 8 ] R.C. Rempel: "Optical Properties of Lasers as Compared to Conventional Radiation", Spectra-Physics Inc., Laser Technical Bulletin n<sup>o</sup> 1, Mountain View, California, 1963.
- [ 9 ] L. Schawlow y C.H. Townes: Phys. Rev., 112, 1940 (1958).
- [ 10 ] K.R. Mannes y A.E. Siegman: Phys. Rev., A4, 373 (1971).
- [ 11 ] H. Weichel: Amer. J. Phys., 44, 839 (1976).
- [ 12 ] L.W. Anderson y J.E. Lawler: Amer. J. Phys., 46, 162 (1978).
- [ 13 ] S.F. Jacobs: Amer. J. Phys., 47, 597 (1979).
- [ 14 ] S. Kimel y S. Speiser, Chem. Rev., 77, 437 (1977).
- [ 15 ] A.G. Fox y T. Li: Bell System Tech. J., 40, 453 (1961).
- [ 16 ] G.D. Boyd y J.P. Gordon, Bell System Tech. J., 40, 489 (1961).
- [ 17 ] G.D. Boyd y H. Kogelnik, Bell System Tech. J., 41, 1347 (1962).
- [ 18 ] H. Kogelnik y T. Li: Appl. Opt., 5, 1550 (1966).
- [ 19 ] P.W. Smith: "Single Frequency Lasers", en "Lasers", vol. 4, editado por A.K. Levine y A.J. DeMaria, Dekker, New York, 1976.

- [20] Y. Suzuki y A. Tachibana: Appl. Opt., 16, 1481 (1977).
- [21] P.W. Smith: Proc. IEEE, 58, 1342 (1970).
- [22] A.G. Fox y T.Li: IEEE J. Quantum Electron., QE-2, 774 (1966).
- [23] W.W. Rigrod: Appl. Phys. Lett., 2, 51 (1963).
- [24] W. Brunner y H. Paul: Opt. Comm., 24, 11 (1978).
- [25] W. Brunner y H. Paul: Opt. Comm., 24, 16 (1978).
- [26] T. Li, Bell System Tech. J., 44, 917 (1965).
- [27] R.A. Chodzko y A.N. Chester: "Optical Aspects of Chemical Lasers", en "Handbook of Chemical Lasers", editado por R.W.F. Gross y J.F. Bott, Wiley, New York, 1976, cap. 3.
- [27a] R.A. Chodzko y A.N. Chester: ibid, pág. 105, 106.
- [28] A.L. Bloom: "Properties of Laser Resonators Giving Uniphase Wave Fronts", Spectra-Physics Inc., Laser Technical Bulletin n° 2, Mountain View, California, 1963.
- [29] C.D. Sinclair: Appl. Opt., 3, 1067 (1964).
- [29a] C.D. Sinclair: ibid. Fig. 6.
- [30] M.J. Beesley: "Lasers and Their Applications", Taylor and Francis Ltd, London, 1972.
- [31] G.C. Pimentel y K.L. Kompa: "What is a Chemical Laser? An Introduction" en "Handbook of Chemical Lasers", editado por R.W.F. Gross y J.F. Bott, Wiley, New York, 1976.
- [32] K.L. Kompa, Top. Curr. Chem., 37, 1 (1973).
- [33] T.A. Cool, T.J. Falk y R.R. Stephens: Appl. Phys. Lett., 15, 318 (1969).
- [34] T.A. Cool y R.R. Stephens: J. Chem. Phys., 51, 5175 (1969).
- [35] T.A. Cool y R.R. Stephens: Appl. Phys. Lett., 16, 55 (1970)
- [36] R.J. Donovan y D. Husain: Trans. Faraday Soc., 62, 11 (1966)
- [37] G.N. Birich, G.I. Drozd, V.N. Sorokin y I.I. Struk: Sov. Phys.-JETP Lett., 19, 27 (1974).



- [38] T.L. Andreeva, G.N. Birich, V.N. Sorokin y I.I. Struk: Sov. J. 'Quantum Electron. 6, 781 (1976).
- [39] C.R. Guiliano y L.D. Hess: J. Appl. Phys., 40, 2428 (1969).
- [40] J.D. Campbell y J.V.V. Kasper: Chem. Phys. Lett., 10, 436 (1971).
- [41] D.G. Truhlar: J. Chem. Phys., 56, 3189 (1972).
- [42] M.A. Pollack: Appl. Phys. Lett., 9, 94 (1966).
- [43] M.A. Pollack: Appl. Phys. Lett., 9, 230 (1966).
- [44] C. Martin Stickley: Physics Today, vol. 31, n°5, pág. 50-58, mayo 1978.
- [45] David A. Dingee: Chemical & Engineering News, vol. 57, n°14, pág. 32-47, abril 1979.
- [46] D. Porret y C.F. Goodeve: Proc. Roy. Soc. London Ser. A, 165, 331 (1938).
- [47] M.A. Pollack: Appl. Phys. Lett., 8, 36 (1966).
- [48] D. Husain y R. J. Donovan, Adv. Photochem., 8, 1 (1971).
- [49] A.J. De Maria y C.J. Ultee, Appl. Phys. Lett., 9, 67 (1966).
- [50] T.L. Andreeva, V.A. Dudkin, V.I. Malyshev, G.V. Mikhailov, V.N.. Sorokin y L.A. Novikova, Sov. Phys.-JETP, 22, 969 (1966).
- [51] N.G. Basov, D.K. Gavrilina, Yu.S. Leonov y V.A. Sautkin: Sov. Phys.-JETP Lett., 8, 106 (1968).
- [52] V.Yu. Zalesskii y E.I. Moskaliev, Sov. Phys.- JETP, 30, 1019 (1970).
- [53] K. Hohla y K.L. Kompa, Chem. Phys. Lett., 14, 445 (1972).
- [54] K. Hohla y K.L. Kompa: Z. Naturforsch., 27a, 938 (1972).
- [55] M.A. Gusinow, J.K. Rice y T.D. Padrick: Chem. Phys. Lett., 21, 197 (1973).
- [56] K. Hohla y K.L. Kompa: "The Photochemical Iodine Laser" en "Handbook of Chemical Lasers", editado por R.W.F. Gross y J.F. Bott, Wiley, New York, 1976.
- [57] D.E. O'Brien y J.R. Bowen: J. Appl. Phys., 40, 4767 (1969).

- [58] D.E. O'Brien y J.R. Bowen: J. Appl. Phys., 42, 1010 (1971).
- [59] V. Yu. Zaleskii: Sov. Phys.-JETP, 34, 474 (1972).
- [60] V. Yu. Zaleskii: Sov. J. Quantum Electron., 4, 1009 (1975).
- [61] T.L. Andreeva, S.V. Kuznetsova, A.I. Maslov, I.I. Sobel'man y V.N. Sorokin: Sov. Phys.-JETP Lett., 13, 449 (1971).
- [62] D.M. Haaland y R.T. Meyer, Int. J. Chem. Kin., 6, 297 (1974).
- [63] R.E. Palmer y T.D. Padrick: J. Chem. Phys., 64, 2051 (1976).
- [64] G.N. Vinokurov y V. Yu. Zaleskii, Sov. J. Quantum Electron., 8, 1191 (1978).
- [65] C.M. Ferrar: Appl. Phys. Lett., 12, 381 (1968).
- [66] D.W. Gregg, R.E. Kidder y C.V. Dobler: Appl. Phys. Lett., 13, 297 (1968).
- [67] P. Gensel, K. Hohla y K.L. Kompa: Appl. Phys. Lett., 18, 48 (1971).
- [68] W.C. Hwang y J.V.V. Kasper: Chem. Phys. Lett., 13, 511 (1972).
- [69] V.S. Zuev, V.A. Katulin, V. Yu. Nosach y O. Yu. Nosach: Sov. Phys. JETP, 35, 870 (1972).
- [70] G. Brederlow, K.J. Witte, E. Fill, K. Hohla y R. Volk: IEEE J. Quantum Electron., QE-12, 152 (1976).
- [71] N.G. Basov, L.E. Golubev, V.S. Zuev, V.A. Katulin, V.N. Netemin, V. Yu. Nosach, O. Yu. Nosach y A.L. Petrov: Sov. J. Quantum Electron., 3, 524 (1974).
- [72] T. Donohue y J.R. Wiesenfeld: Chem. Phys. Lett., 33, 176 (1975).
- [73] T. Donohue y J.R. Wiesenfeld: J. Chem. Phys., 63, 3130 (1975).
- [74] R.A. Boschi y D.R. Salahub: Molecular Phys., 24, 289 (1972).
- [75] R.F. Schaufele y L. Goodman: Trans. Faraday Soc., 61, 597 (1965).
- [76] K. Kimura y S. Nagakura: Spectrochim. Acta, 17, 166 (1961).
- [77] J.R. Dacey: Disc. Faraday Soc., 14, 84 (1953).
- [78] L.H. Sutcliffe y A.D. Walsh: Trans. Faraday Soc., 57, 873 (1961).

- [79] F.J. Comes y S. Pionteck: Chem. Phys. Lett., 42, 558 (1976).
- [80] F.J. Comes y S. Pionteck: Chem. Phys. Lett., 58, 616 (1978).
- [81] R.G. Derwent y D.A. Thrust: Chem. Phys. Lett., 9, 591 (1971).
- [82] V.A. Katulin, V. Yu. Nosach y A.L. Petrov: Sov. J. Quantum Electron., 9, 169 (1979).
- [83] V. Jaccarino, J.G. King, R.A. Satten y H.H. Stroke: Phys. Rev., 94, 1798 (1954).
- [84] R. Onaka: Phys. Rev., 106, 1178 (1957).
- [85] J. Verges: Spectrochim. Acta, 24B, 177 (1969).
- [86] I.M. Belousova, V.M. Kisilev y V.N. Kurzenkov: Opt. Spectrosc., 33, 112 (1972).
- [87] E.S. Mukhtar, H. J. Baker y T.A. King: J. Phys. D: Appl. Phys., 11, 1303 (1978).
- [88] L.S. Ershov y V. Yu. Zalesskii: Sov. J. Quantum Electron., 8, 6419 (1978).
- [89] F.T. Aldridge: Appl. Phys. Lett., 22, 180 (1973).
- [90] R.A. Palmer y M.A. Gusinow: J. Appl. Phys., 45, 2174 (1974).
- [91] H.J. Baker y T.A. King: J. Phys. D: Appl. Phys., 8, 609 (1975).
- [92] F. T. Aldridge: IEEE J. Quantum Electron., QE-11, 215 (1975).
- [93] T.D. Padrick y R.E. Palmer: J. Chem. Phys., 62, 3350 (1975).
- [94] V. Yu. Zalesskii y S.S. Polikarpov: Sov. J. Quantum Electron., 55, 826 (1975).
- [95] W. Fuss y K. Hohla: Z. Naturforsch., 31a, 569 (1976).
- [95a] W. Fuss y K. Hohla: *ibid*, Fig. 2b.
- [96] V.I. Babkin, S.V. Kuznetsova y A.I. Maslov: Sov. J. Quantum Electron., 8, 285 (1978).
- [97] E.S. Mukhtar, H.J. Baker y T.A. King: Opt. Comm., 24, 167 (1978).
- [98] H.J. Baker y T.A. King: J. Phys. D: Appl. Phys., 9, 2433 (1976).

- [ 99] R.E. Beverly: Opt. Comm., 15, 204 (1975).
- [100] I.M. Belousova, B.D. Bobrov, V.M. Kisilev, V.N. Kurzenkov y P.I. Krepostnov: Opt. Spectrosc., 37, 20 (1974).
- [101] B.D. Bobrov, V.M. Kisilev y A.S. Grenishin: Sov. J. Quantum Electron., 7, 342 (1977).
- [102] K. Hohla y K.L. Kompa: IEEE J. Quantum Electron., QE-9, 198 (1973).
- [103] C.C. Davis, R.J. Pirkle, R.A. McFarlane y G.J. Wolga: IEEE J. Quantum Electron., QE-12, 334 (1976).
- [104] I.M. Belousova, B.D. Bobrov, V.M. Kisilev, V.N. Kurzenkov y P.I. Krepostnov: Sov. Phys.-JETP, 38, 258 (1974).
- [105] V.A. Katulin, V. Yu. Nosach y A.L. Petrov: Sov. J. Quantum Electron., 8, 380 (1978).
- [106] I.M. Belousova, B.D. Bobrov, V.M. Kisilev y V.N. Kurzenkov: Sov. J. Quantum Electron., 4, 767 (1974).
- [107] E.S. Mukhtar, H.J. Baker y T.A. King: Opt. Comm., 19, 193 (1976).
- [108] I.M. Belousova, B.D. Bobrov, A.S. Grenishin y V.M. Kisilev: Sov. J. Quantum Electron., 7, 249 (1977).
- [109] I. M. Belousova, B.D. Bobrov, V.A. Burtsev, A.S. Grenishin, V.A. Dubyasan'skii, V.M. Kisilev y A. G. Produvnov: Zh. Tekh. Fiz., 47, 1033 (1977).
- [110] V.M. Kisilev, B.D. Bobrov, A.S. Grenishin y T.N. Kotlikova: Sov. J. Quantum Electron., 8, 181 (1978).
- [111] E.A. Yukov: Sov. J. Quantum Electron., 3, 117 (1973).
- [112] V.A. Alekseev, T.L. Andreeva, V.N. Volkov y E.A. Yukov: Sov. Phys.-JETP, 36, 238 (1973).
- [113] J.R. Majer y J.P. Simons: Adv. Photochem., 2, 137 (1964).
- [114] G.M. Harris y J.E. Willard: J. Amer. Chem. Soc., 76, 4678 (1954).
- [115] S.J. Riley y K.R. Wilson: Disc. Faraday Soc., 53, 132 (1972).
- [116] I.M. Belousova, N.G. Gorshkov, O.B. Danilov, V. Yu. Zales'skii y I.L. Yachnev, Sov. Phys.-JETP, 38, 254 (1974).

- [117] W. Fuss y K. Hohla, Opt. Comm., 18, 427 (1976).
- [118] R.J. Donovan y D. Husain, Trans. Faraday Soc., 62, 1050 (1966)..
- [119] R.J. Donovan y D. Husain: Trans. Faraday y Soc., 62, 2023 (19666).
- [120] D.Husain y J.R. Wiesenfeld: Nature, 213, 1227 (1967).
- [121] D. Husain y J.R. Wiesenfeld: Trans. Faraday Soc., 63, 1349 (19667).
- [122] R.J. Donovan, F.G.M. Hathorn y D. Husain: Trans. Faraday Soc., 64, 3192 (1968).
- [123] F.G.M. Hathorn y D. Husain: Trans. Faraday Soc., 65, 2678 (19699).
- [124] R.J. Donovan y D. Husain: Chem. Rev., 70, 489 (1970).
- [125] R.J. Donovan y D. Husain: Ann. Rept. Chem. Soc. London Ser. A, 68 (1971).
- [126] R.J. Donovan y C. Fotakis: J. Chem. Phys., 61, 2159 (1974).
- [127] S.V. Kuznetsova y A. I. Maslov: Sov. J. Quantum Electron., 3, 4468 (1974).
- [128] D.H. Burde, R.A. McFarlane y J.R. Wiesenfeld: Chem. Phys. Lett., 32 296 (1975).
- [129] V. Yu. Zalesskii y T.I. Krupenikova: Opt. Spectosc., 30, 439 (11971)
- [130] D.H. Burde y R.A. McFarlane: J. Chem. Phys., 64, 1850 (1976).
- [131] R.J. Butcher, R.J. Donovan, C.Fotakis, D. Frenie y A.G.A. Rae: Chem Phys. Lett., 30, 398 (1975).
- [132] V.A. Kartazaev, N.P. Penkin y Yu. A. Tolmachev: Sov. J. Quantum Electron., 7, 608 (1977).
- [133] C. Fotakis y R.J. Donovan: J.C.S. Faraday Trans.II, 74, 2099 (11978)
- [134] S.L. Dobychin, L.D. Mikheev, A.B. Pavlov , V.P. Fokanov y M.A. Khodarkovskii: Sov. J. Quantum Electron., 8, 1383 (1978).
- [135] S. Aditya y J.E. Willard: J. Chem. Phys., 44, 418 (1966).
- [136] V. Yu. Zalesskii y A.A. Venediktov: Sov. Phys.-JETP, 28, 1104 ((1969
- [137] A.A. Filyukov y Yu. Karpov: Sov. Phys.- JETP, 35, 63 (1972).

- [138] I.M. Belousova, O.B. Danilov, N.S. Kladovikova y I.L. Yachnev: Sov. Phys.-Tech. Phys., 15, 1212 (1971).
- [139] S.W. Benson: "Thermochemical Kinetics", Wiley, New York, 1968, pág. 67.
- [140] L.S. Ershov, V. Yu. Zaleskii y V.N. Sokolov: Sov. J. Quantum Electron., 8, 494 (1978).
- [141] S.V. Kuznetsova y A.I. Maslov: Sov. J. Quantum Electron., 8, 906 (1978).
- [142] F.K. Truby y J.K. Rice: Int. J. Chem. Kin., 5, 721 (1973).
- [143] T.L. Andreeva, V.I. Malyshev, A.I. Maslov, I.I. Sobel'man y V.N. Sorokin: Sov. Phys.-JETP Lett., 10, 271 (1969).
- [144] R.E. Palmer y M.A. Gusinow: IEEE J. Quantum Electron., QE-10, 615 (1974).
- [145] M.A. Gusinow y J.R. Freeman: J. Appl. Phys., 46, 796 (1975).
- [146] E.V. Arkhipova, B.L. Borovich y A.K. Zapol'skii: Sov. J. Quantum Electron., 6, 686 (1976).
- [147] E.V. Arkhipova, B.L. Borovich y A.K. Zapol'skii: Sov. J. Quantum Electron., 6, 691 (1976).
- [148] R.J. Pirkle, C.C. Davis y R.A. McFarlane: Chem. Phys. Lett., 36, 305 (1975).
- [149] I.M. Belousova, O.B. Danilov, I.A. Sinitsina y V.V. Spiridonov: Sov. Phys.-JETP, 31, 791 (1970).
- [150] L.E. Golubev, V.S. Zuev, W.A. Katulin, V.Yu. Nosach y O.Yu. Nosach: Sov. J. Quantum Electron., 3, 464 (1974).
- [151] K.J. Witte: J. Phys. D: Appl. Phys., 12, 9 (1979).
- [152] B.L. Borovich, V.S. Zuev, V.A. Katulin, V. Yu. Nosach, O. Yu. Nosach, A.V. Startsev y Yu. Yu. Stoilov: Sov. J. Quantum Electron., 5, 695 (1975).
- [153] L. K. Gavrilina, V. Yu. Karpov, Yu. S. Leonov, V.A. Sautkin y A.A. Filyukov: Sov. Phys.-JETP, 35, 258 (1972).

- [154] A.V. Antonov, N.G. Basov, V.S. Zuev, V.A. Katulin, K.S. Korolkov, G.V. Mikhailov, V. N. Netemin, F.A. Nikolaev, V. Yu. Nosach, O. Yu. Nosach, A.L. Petrov y A. V. Shelobolin: Sov. J. Quantum Electron., 5, 123 (1975).
- [155] N. G. Basov y V.S. Zuev: Nuovo Cim., 31B, 129 (1976).
- [156] N.G. Basov y V.S. Zuev: Opt. Comm., 18, 167 (1976).
- [157] V.A. Katulin, V.Yu. Nosach y A.L. Petrov: Sov. J. Quantum Electron., 6, 998 (1976).
- [158] L.D. Pleasance y L.A. Weaver: Appl. Phys. Lett., 27, 407 (1975)).
- [159] M.C. Wong y R.E. Beverly: Opt. Comm., 20, 19 (1977).
- [160] M.C. Wong y R.E. Beverly: Opt. Comm., 20, 23 (1977)
- [161] A.S. Kamrukov, G.N. Kashnikov, N.P. Kozlov, V.A. Malashchenko, V.K. Orlov y Yu. Protasov: Sov. J. Quantum Electron., 6, 1101 (1976)).
- [162] A.T. Pritt, R.D. Coombe, D. Pilipovich, R.I. Wagner, D. Benard y C. Dymek: Appl. Phys. Lett., 31, 745 (1977).
- [163] D.J. Benard, W.C. Mc. Dermott, N.R. Pechelkin y R.R. Bousek: Appl. Phys. Lett., 34, 40 (1979).
- [164] S.J. Davis: Appl. Phys. Lett., 32, 656 (1978).
- [165] T.L. Andreeva, G.N. Birich, I.I. Sobel'man, V.N. Sorokin y I.I.. Struk: Sov. J. Quantum Electron., 7, 1230 (1977).
- [166] V.P. Ageev, T.L. Andreeva, V.I. Babkin, I.M. Maslov, I.I. Sobell'man y E.A. Yukov: Sov. J. Quantum Electron., 9, 83 (1979)
- [167] H.J. Baker y T.A. King: J. Phys. D: Appl. Phys., 8, L31 (1975)..
- [168] R.J. Pirkle, C.C. Davis y R.A. McFarlane: J. Appl. Phys., 46, 44083 (1975).
- [169] I.M. Belousova, V.M. Kisilev y V.N. Kurzenkov: Opt. Spectrosc., 33, 115 (1972).
- [170] Yu. A. Anan'ev, I.M. Belousova, O.B. Danilov, V.V. Spiridonov y N.P. Trofimov: Sov. J. Quantum Electron., 4, 164 (1974).

- [1711] O.B. Danilov, N.A. Novoselov y V.V. Spiridonov: Opt.Spectrosc., 39, 382 (1975).
- [1722] O.B. Danilov, N.A. Novoselov, V.V. Spiridonov y N.P. Trofimov: Opt. Spectrosc., 41, 68 (1976).
- [1733] H.J. Baker, T.A. King y W.G. McNaught: J. Phys. D: Appl. Phys., 12, 997 (1979).
- [1744] N.G. Basov, V.S. Zuev, V.A. Katulin, A. Yu. Lyubchenko, V. Yu. Nosach y A. L. Petrov: Sov. J. Quantum Electron., 9, 174 (1979).
- [1755] V.S. Zuev, V.N. Netemín y O. Yu. Nosach: Sov. J. Quantum Electron., 9, 522 (1979).
- [1766] S. Ishii, B. Ahlborn y F.L. Curzon, Appl. Phys. Lett., 27, 118 (1975).
- [1777] K. Hohla, W. Fuss, R. Volk y K.J. Witte: Opt. Comm., 13, 114 (1975).
- [1788] K. Hohla y K.L. Kompa: Appl. Phys. Lett., 22, 77 (1973).
- [1799] V.A. Katulin, V. Yu. Nosach y A.L. Petrov: Sov. J. Quantum Electron., 6, 205 (1976).
- [1800] E. Fill y K. Hohla: Opt. Comm., 18, 431 (1976).
- [1811] V.A. Gaidash, V.A. Eroshenko, S.G. Lapin, V.I. Shemyakin y V.K. Shurygin: Sov. J. Quantum Electron., 6, 921 (1976).
- [1822] S. Ishii, K. Fong y B. Ahlborn: Rev. Sci. Instrum., 47, 600 (1976).
- [1833] D.R. Gray, H.J. Baker y T.A. King: J. Phys. D: Appl. Phys., 10, 169 (1977).
- [1844] J.C. Farcy, D. Beaupere y O. Witte: Comptes Rendus B, 284, 467 (1977).
- [1855] D. Beaupere y J.C. Farcy: Opt. Comm., 27, 410 (1978).
- [1865] V.A. Gaidash, M.R. Mochalov, V.I. Shemyakin y V.K. Shurygin: Sov. J. Quantum Electron., 8, 530 (1978).
- [1877] H. J. Baker y T.A. King: J. Phys. E: Sci. Instrum., 9, 287 (1976).
- [1888] E. Fill, K. Hohla, G.I. Schappert y R. Volk: Appl. Phys. Lett., 29, 805 (1976).



- [189] E. Yablonovitch y J. Goldhar: Appl. Phys. Lett., 25, 580 (1974)..
- [190] K. Hohla, G. Brederlow, W. Fuss, K.L. Kompa, J. Raeder, R. Volk,, S. Witkowski y K.J. Witte: J. Appl. Phys., 46, 808 (1975).
- [191] G. Brederlow, E. Fill, W. Fuss, K. Hohla, R. Volk y K. J. Witte:: Sov. J, Quantum Electron., 6, 491 (1976).
- [192] V.A. Gaidash, G.A. Kirilov, S. B. Kormer, S.G. Lapin, V.I. She-myakin y V.K. Shurygin, Sov. Phys.-JETP Lett., 20, 107 (1974).
- [193] J, W. Olsen: J. Appl. Phys., 47, 5360 (1976).
- [194] H. Saito, T. Uchiyama y T. Fujioka: IEEE J. Quantum Electron., QE-14, 302 (1978).
- [195] N. Skribanowitz y B. Kopainsky: Appl. Phys. Lett., 27, 490 (1975).
- [196] N. Skribanowitz, B. Kopainsky y W. Kaiser: Opt. Quantum Electrom., 8, 219 (1976).
- [197] M.E. Riley, T.D. Padrick y R.E. Palmer: IEEE J. Quantum Electrom., QE-15, 178 (1979).
- [198] J.M. Pérez Martínez: Tesis Doctoral, Universidad Complutense de Madrid, 1975.
- [199] H. J. Baker y T.A. King: J. Phys. E: Sci. Instrum., 8, 219 (1975).
- [200] R.E. Palmer, T.D. Padrick y R.B. Pettit: J. Appl. Phys., 48, 31225 (1977).
- [201] J.G. Calvert y J.N. Pitts: "Photochemistry", Wiley, New York, 19967.
- [201a] J.G. Calvert y J.N. Pitts: *ibid*, pág. 107.
- [201b] J.G. Calvert y J.N. Pitts: *ibid*, pág. 648.
- [201c] J.G. Calvert y J.N. Pitts: *ibid*, pág. 587.
- [202] E.H. Holt y R.E. Haskell: "Foundations of Plasma Dynamics", The Macmillan Company, New York, 1965.
- [203] I.S. Marshak: Sov. Phys.-Usp., 5, 478 (1962).
- [204] F. Ollivier: Tesis Doctoral, Université de Bretagne Occidentale, 1974.

- [2055] M.J. Berry: Tesis Doctoral, University of California, Berkeley, 1970.
- [2066] J.N. Poukey, J.B. Gerardo y M.A. Gusinow: Phys. Rev., 179, 211 (1969).
- [2077] J.P. Markiewicz y J.L. Emmet: IEEE J. Quantum Electron., QE-2, 707 (1966).
- [2088] R.H. Dishington, W.R. Hook y R.P. Hilberg: Appl. Opt., 13, 2300 (1974).
- [2099] E.R. Wooding, Electron. Eng., 33, 73 (1961).
- [2100] E.R. Wooding: Appl. Opt., 5, 777 (1966).
- [2111] J.H. Goncz; J. Appl. Phys., 36, 742 (1965).
- [2122] R.H. Dishington: Appl. Opt., 16, 1578 (1977).
- [2133] J.F. Holzrichter y J.L. Emmet: Appl. Opt., 8, 1459 (1969).
- [2144] J.H. Goncz y P. Bruce Newell: J. Opt. Soc. Amer., 56, 87 (1966).
- [2155] A.D. Klementov y G.V. Mikhailov: J. Appl. Spectrosc., 9, 1177 (1968).
- [2163] J.L. Emmet, A.L. Schawlow y E.H. Weinberg; J. Appl. Phys., 35, 2601 (1964).
- [2177] M.P. Vanyukov, A.A. Mak y A.I. Sadykova: Sov. Phys.- Dokl., 135, 1237 (1960).
- [2181] M.A. Gusinow: J. Appl. Phys., 44, 4567 (1973).
- [2191] M.A. Gusinow: J. Appl. Phys., 46, 4847 (1975).
- [2201] M.A. Gusinow: IEEE J. Quantum Electron., QE-11, 929 (1975).
- [221aa] J.R. Reitz y I.J. Milford: "Fundamentos de la Teoría Electromagnética", Unión Tipográfica Editorial Hispano Americana (UTEHA), Mexico, 1972, Cap. 13.
- [221bb] J.R. Reitz y F.J. Milford: *ibid*, cap. 9.
- [222] A. Tobar: Tesis Doctoral, Universidad Complutense de Madrid, 1978, pág. 26.
- [223] T. Donohue y J.R. Wiesenfeld: J. Phys. Chem., 80, 437 (1976).

- [224] R.T. Meyer: J. Chem. Phys., 78, 878 (1974).
- [225] H.W. Chang y G. Burns: J. Chem. Phys., 64, 349 (1976).
- [226] R. Srinivasan y J.R. Lankard: J. Phys. Chem., 78, 951 (1974).
- [227] M.T. Serrano Nuñez, Tesis Doctoral, Universidad Complutense de Madrid, 1975.
- [228] W. West y L. Schlessinger: J. Amer. Chem. Soc., 60, 961 (1938)..
- [229] R.D. Schultz y H.A. Taylor: J. Chem. Phys., 18, 194 (1950).
- [230] N. Davidson y T. Carrington: J. Amer. Chem. Soc., 74, 6277 (1952).
- [231] R.D. Souffie, R.R. Williams y W.H. Hamill: J. Amer. Chem. Soc., 78, 917 (1956).
- [232] R.D. Doepker y P. Ausloos: J. Chem. Phys., 41, 1865 (1964).
- [233] L. Valle, Tesis Doctoral, Universidad Complutense de Madrid, 19979.
- [234] J.K. Rice y F.K. Truby: Chem. Phys. Lett., 19, 440 (1973).
- [235] J.O. Hirschfelder, C.F. Curtiss y R.B. Bird: "Molecular Theory of Gases and Liquids", Wiley, New York, 1964.
- [236] R.D. Levine y R.B. Bernstein: "Molecular Reaction Dynamics", Oxford University Press, New York, 1974.
- [237a] W. Kauzmann: "Kinetic Theory of Gases", Benjamin, New York, 19666, pág. 203.
- [237b] W. Kauzmann: ibid, pág. 180.
- [238] R. Engelman Jr. y N.R. Davidson: J. Amer. Chem. Soc., 82, 4770 (1960).
- [239] D.L. Bunker y N.R. Davidson: J. Amer. Chem. Soc., 80, 5085 (19558).
- [240] J.A. Blake y G. Burns: J. Chem. Phys., 54, 1480 (1971).
- [241] M.C. Flowers y S.W. Benson: J. Chem. Phys., 38, 882 (1963).
- [242] A. B. Callear y H.E. Van der Bergh, Chem. Phys. Lett., 5, 23 (11970)
- [243] R.E. Weston y H.A. Schwarz: "Cinética Química", Ed Alhambra, Maadri 1976, Pág. 103.

- [2444] T. Ogawa, G.A. Carlson y G.C. Pimentel: J. Phys. Chem., 74, 2090 (1970).
- [2445] A. Tobar, resultados no publicados.
- [2446] P.A. Fox: "Mathematical Software", editado por J.R. Rice, Academic Press, New York, 1971, Pág. 477.

*Angel G. C.*



BIBLIOTECA